

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-064030
(43)Date of publication of application : 28.02.2002

(51)Int.Cl. H01G 4/18
C08L 67/03
H01G 4/015
//(C08L 67/03
C08L 23:08)

(21)Application number : 2000-248276 (71)Applicant : SUMITOMO CHEM CO LTD
(22)Date of filing : 18.08.2000 (72)Inventor : YAMAGUCHI TAKAZO
KUMADA HIROAKI
FURUTA MOTONOBU

(54) FILM CAPACITOR

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a film capacitor which is excellent in heat resistance, high-frequency characteristic and electric insulation, and is flexible and low in water absorption, light in weight and small in thickness.

SOLUTION: A film capacitor comprises film made of liquid crystal polymer showing an optical anisotropy during melting. The film capacitor uses as a dielectric a film made of liquid crystal polymer showing an optical anisotropy during melting, and a metallic foil or a metallic vapor-deposited film as an electrode. A liquid crystal polymer showing an optical anisotropy during melting is a liquid crystal polyester resin composition (A) using a liquid crystal polyester as a continuous phase, and (B) using a copolymer with a functional group having a reactivity with the liquid crystal polymer as a dispersed phase. A liquid crystal polymer showing an optical anisotropy during melting is a composition that is obtained by melting and mixing (A) a 56.0–99.9 wt.% liquid crystal polyester and (B) a 44.0–0.1 wt.% copolymer with a functional group having a reactivity with the liquid crystal polymer.

* NOTICES *

JPO and INPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

- [Claim 1]A film capacitor which uses a film which consists of a liquid crystalline polymer which shows optical anisotropy at the time of melting.
[Claim 2]A film capacitor which uses as a dielectric a film which consists of a liquid crystalline polymer which shows optical anisotropy at the time of melting, and becomes considering a metallic foil or a metal evaporated film as an electrode.

[Claim 3]The film capacitor according to claim 2 which a metallic foil is copper foil, aluminium foil, tinfoil, gold foil, or silver leaf, and is characterized by a metal evaporated film using at least one sort of copper, aluminum, tin, gold, and silver as a vacuum evaporation ingredient.

[Claim 4]The film capacitor according to claim 2 or 3, wherein an adhesives layer intervenes between a film which consists of liquid crystalline polymers, and a metallic foil or a metal evaporated film.

[Claim 5]A liquid crystalline polymer which shows optical anisotropy at the time of melting makes (A) liquid crystal polyester a continuous phase, (B) The film capacitor according to any one of claims 1 to 4 being a liquid-crystal-polyester-resin constituent which uses as a disperse phase a copolymer which has liquid crystal polyester and a functional group which has reactivity.

[Claim 6]A shown liquid crystalline polymer optical anisotropy at the time of melting 56.0 to 99.9 % of the weight of (A) liquid crystal polyester, And the film capacitor according to any one of claims 1 to 4 being a constituent produced by carrying out melt kneading of 44.0 to 0.1 % of the weight of the copolymers which have (B) liquid crystal polyester and a functional group which has reactivity.

[Claim 7]The film capacitor according to claim 5 or 6, wherein liquid crystal polyester and a functional group which has reactivity are an oxazolyl group, an epoxy group, or an amino group.

[Claim 8]The film capacitor according to claim 5 or 6, wherein a copolymer (B) which has liquid crystal polyester and a functional group which has reactivity is a copolymer which contains an unsaturated-carboxylic-acid glycidyl ester unit and/or an unsaturation glycidyl ether unit 0.1 to 30% of the weight.

[Claim 9]The film capacitor according to any one of claims 5 to 8 with which a copolymer (B) which has liquid crystal polyester and a functional group which has reactivity is characterized by the amount of heat of fusion of a crystal being a less than 3J/g copolymer.

[Claim 10]The film capacitor according to any one of claims 5 to 9 with which Mooney viscosity of a copolymer (B) which has liquid crystal polyester and a functional group which has reactivity is characterized by being the range of 3-70. Mooney viscosity here says a value measured using a large rotor according to JIS K6300 at 100 **.

[Claim 11]The film capacitor according to any one of claims 5 to 10, wherein a copolymer (B) which has liquid crystal polyester and a functional group which has reactivity is the rubber which has an epoxy group.

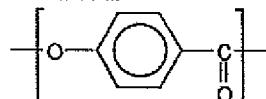
[Claim 12]The film capacitor according to claim 11, wherein rubber which has an epoxy group consists of acrylic acid (meta) ester ethylene-(unsaturated-carboxylic-acid glycidyl ester and/or unsaturation glycidyl ether) copolymer rubber.

[Claim 13](Meta) Acrylic ester Methyl acrylate, methyl methacrylate, n-butyl acrylate, n-butyl methacrylate, tert-butyl acrylate, The film capacitor according to claim 12 being a thing containing at least one sort chosen from tert-butyl methacrylate, 2-ethylhexyl acrylate, and 2-ethylhexyl methacrylate.

[Claim 14]The film capacitor according to any one of claims 5 to 10, wherein a copolymer (B) which has liquid crystal polyester and a functional group which has reactivity is thermoplastics which has an epoxy group.

[Claim 15]In thermoplastics which has an epoxy group, the (a) ethylene unit 50 to 99 % of the weight, An unsaturated-carboxylic-acid glycidyl ester unit and/or an unsaturation glycidyl ether unit (b) 0.1 to 30 % of the weight, (c) The film capacitor according to claim 14, wherein an ethylene system unsaturation ester compound unit is an epoxy group content ethylenic copolymer which consists of 0 to 50 % of the weight.

[Claim 16]liquid crystal polyester (A) -- the following repeated structure unit -- at least -- 30-mol% of the whole -- the film capacitor according to any one of claims 5 to 15 being what included.



[Claim 17]The film capacitor according to any one of claims 5 to 15, wherein liquid crystal

polyester (A) is what is produced by making aromatic dicarboxylic acid, aromatic diol, and aromatic hydroxycarboxylic acid react.

[Claim 18] The film capacitor according to any one of claims 5 to 15, wherein liquid crystal polyester (A) is what is produced by making combination of aromatic hydroxycarboxylic acid of a different kind react.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and INPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the film capacitor which uses the film which consists of liquid crystalline polymers.

[0002]

[Description of the Prior Art] Generally, a film capacitor uses a plastic film as a dielectric, uses a metallic foil and a metal evaporated film for an electrode, it rolls these in piles, carries out a time, and is made. The film capacitor is broadly used for electronic measuring instruments, such as a marine vessel, an airplane, a spacecraft machine, and a vehicle, wireless radios, the size motor and fluorescent lamp of an electric appliance, a mercury-vapor lamp, etc. at first in television, radio, and audio equipment. However, the actual condition is that the conventional film capacitor which uses polyethylene, polyolefine like polypropylene, polyester like polyethylene terephthalate, fluororesin, polycarbonate, etc. as a dielectric is not fully filling the further demand from a commercial scene. For example, when polyolefine is used as a dielectric, it cannot solder by heat resistance being insufficient. When polyester was used, since water absorption was also high, there was a problem that a film changed under highly humid [mist beam heat resistance]. When polytetrafluoroethylene is used, the problem of generating fluorine containing gas at the time of the very expensive combustion treatment after no more use with high specific gravity is pointed out. When polycarbonate and polystyrene are used, it is supposed that heat resistance is insufficient too.

[0003]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] The purpose of this invention is excellent in heat resistance, a high frequency characteristic, electrical machinery insulation, etc., supple, and its water absorption is low and there is in providing a film capacitor lightweight and cheap thin moreover.

[0004]

[Means for Solving the Problem] This invention persons continued examination wholeheartedly that such a problem should be solved, and reached this invention. Namely, this invention, [1] A film capacitor which uses a film which consists of a liquid crystalline polymer which shows optical anisotropy at the time of melting is started. This invention, [2] A film which consists of a liquid crystalline polymer which shows optical anisotropy at the time of melting is used as a dielectric, and a film capacitor which becomes considering a metallic foil or a metal evaporated film as an

electrode is started. This invention, [3] An adhesives layer intervenes between a film which consists of liquid crystalline polymers, and a metallic foil or a metal evaporated film. [1] or [2] A film capacitor of a statement is started. This invention, [4] A liquid crystalline polymer which shows optical anisotropy at the time of melting is a liquid-crystal-polyester-resin constituent which makes (A) liquid crystal polyester a continuous phase, and uses as a disperse phase a copolymer which has a functional group which has (B) liquid crystal polyester and reactivity. [1]-A film capacitor given in either of [3] is started. This invention, [5] A liquid crystalline polymer which shows optical anisotropy at the time of melting is a constituent produced by carrying out melt kneading of 44.0 to 0.1 % of the weight of the copolymers which have (A) liquid crystal polyester 56.0 - 99.9 % of the weight and (B) liquid crystal polyester, and a functional group that has reactivity. [1]-A film capacitor given in either of [3] is started.

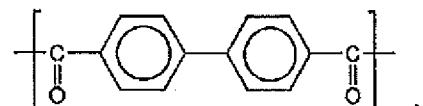
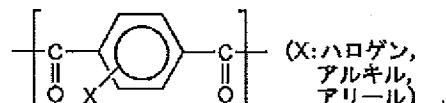
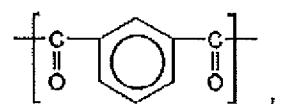
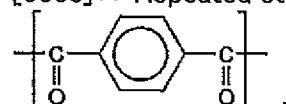
[0005]

[Embodiment of the Invention] Hereafter, this invention is explained still in detail. Various liquid crystalline polymers which show optical anisotropy at the time of melting are known, for example, polyester of all the aromatic systems, polyimide, polyester amide, etc. the resin composition containing them, etc. are mentioned. It is a constituent which contains liquid crystal polyester or liquid crystal polyester preferably as this liquid crystalline polymer in this invention. It is still more preferred to use the liquid-crystal-polyester-resin constituent which uses the copolymer which has a functional group which makes (A) liquid crystal polyester a continuous phase in this invention, and has (B) liquid crystal polyester and reactivity from a point of the performance of molding workability and the film obtained as a disperse phase.

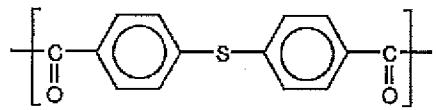
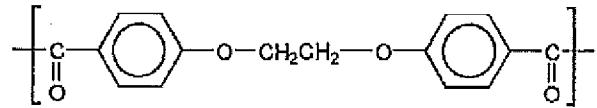
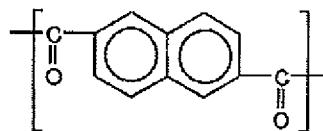
[0006] Liquid crystal polyester here is polyester called a thermotropic liquid crystal polymer. What specifically consists of combination of (1) aromatic dicarboxylic acid, aromatic diol, and aromatic hydroxycarboxylic acid, (2) What consists of combination of aromatic hydronium deer RUBON acid of a different kind, (3) What is produced by making aromatic hydroxycarboxylic acid react to polyester, such as what consists of combination of aromatic dicarboxylic acid and nuclear substitution aromatic diol, and (4) polyethylene terephthalate, is mentioned, and form an anisotropy melting object at the temperature of 400 ** or less. Those ester plasticity derivatives may be used instead of these aromatic dicarboxylic acid, aromatic diol, and aromatic hydroxycarboxylic acid.

[0007] Although the repetitive construct unit originating in the following ** aromatic dicarboxylic acid, the repetitive construct unit originating in ** aromatic diol, and the repetitive construct unit originating in ** aromatic hydroxycarboxylic acid can be illustrated as a repetitive construct unit of this liquid crystal polyester, it is not limited to these.

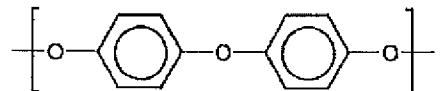
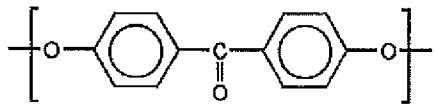
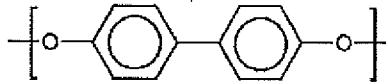
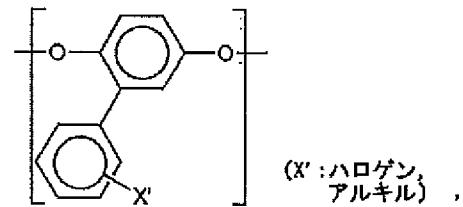
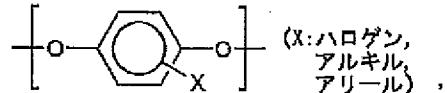
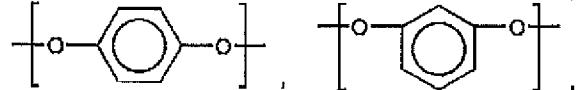
[0008]** Repeated structure unit originating in aromatic dicarboxylic acid :



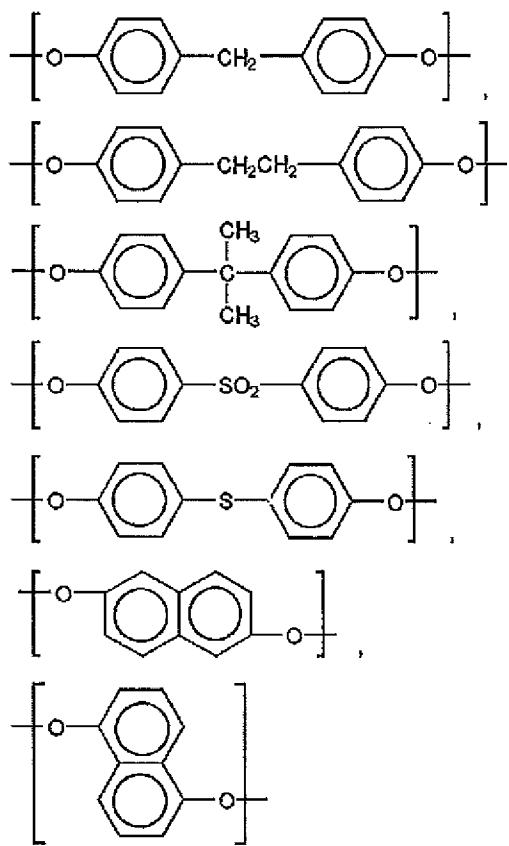
[0009]



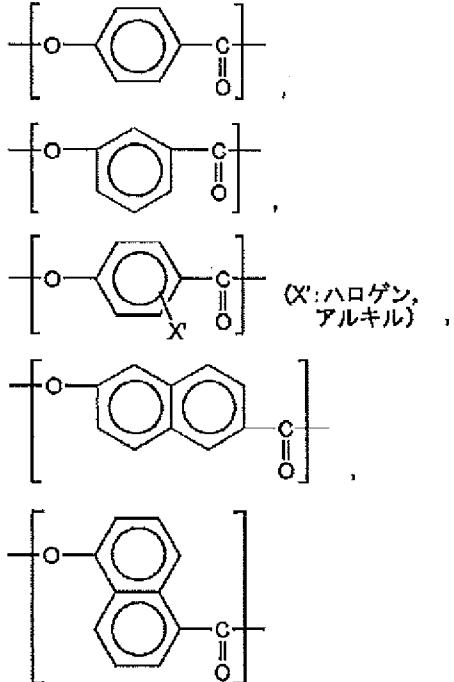
[0010]** Repetitive construct unit originating in aromaticdiol :



[0011]

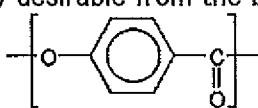


[0012]** Repetitive construct unit originating in aromatic hydroxycarboxylic acid :



[0013]Liquid crystal polyester especially desirable from the balance of heat resistance, a

mechanical property, and processability

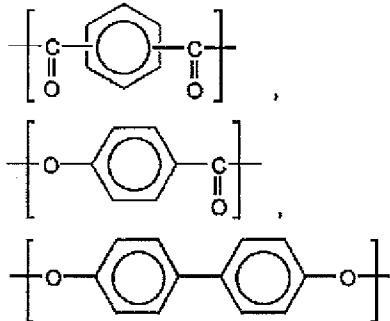


it is a thing including the becoming repeated structure unit -- further -- desirable -- this

repeated structure unit — at least — more than 30 mol % of the whole — it contains.
Specifically, the thing of either the following (I) – (VI) has a preferred combination of a repeated structure unit.

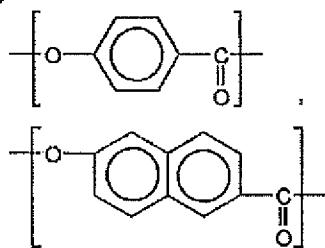
[0014]

(I)



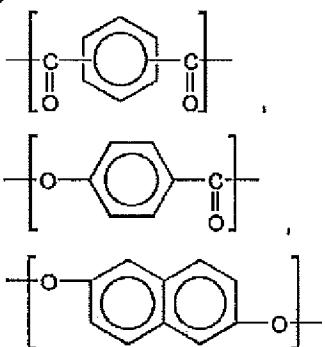
[0015]

(II)



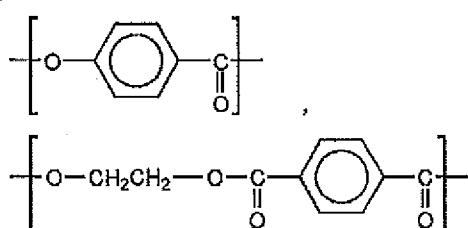
[0016]

(III)



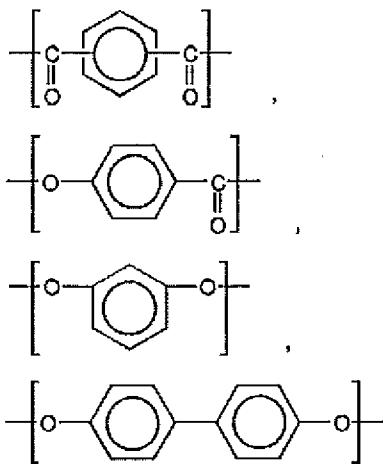
[0017]

(IV)



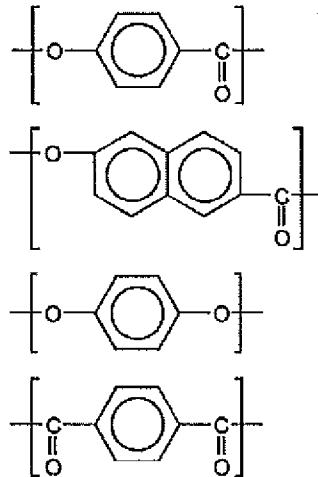
[0018]

(V)



[0019]

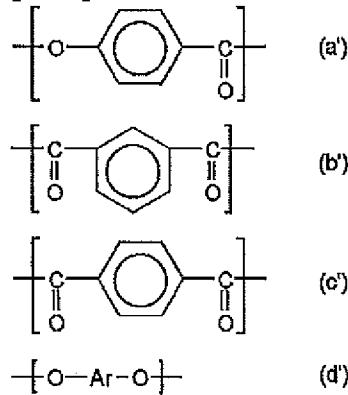
(VI)



[0020]The process of this liquid-crystal-polyester (I) – (VI) is indicated, for example to JP,47-47870,B, JP,63-3888,B, JP,63-3891,B, JP,56-18016,B, JP,2-51523,A, etc. It is the combination of (I), (II), or (IV) preferably in these, and the combination of (I) or (II) is mentioned still more preferably.

[0021]In the liquid-crystal-polyester-resin constituent in this invention, in the field as which high heat resistance is required, as liquid crystal polyester of an ingredient (A), The liquid crystal polyester in which 30–80-mol % and a repeating unit (b') become in the following repeating unit (a'), and 10–25-mol % and a repeating unit (d') consist of 10–35-mol % in 0–10-mol % and a repeating unit (c') is used preferably.

[0022]



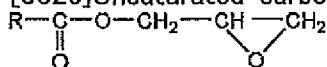
(Ar is a divalent aromatic group among a formula.)

[0023]The ingredient (B) used for the liquid-crystal-polyester-resin constituent in this invention is a copolymer which has liquid crystal polyester and a functional group which has reactivity. As a functional group which has this liquid crystal polyester and reactivity, if it has liquid crystal polyester and reactivity, anything, it will be good and, specifically, an oxazolyl group, an epoxy group, an amino group, etc. will be mentioned. Preferably, it is an epoxy group. Epoxy groups may exist as a part of other functional groups, and a glycidyl group is mentioned as such an example.

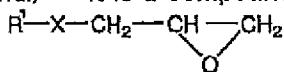
[0024]In a copolymer (B), it is not limited especially as a method of introducing this functional group into a copolymer, and can carry out by the well-known method. For example, it is also possible to introduce the monomer which has this functional group by copolymerization in the synthetic stage of a copolymer, and it is also possible to carry out the graft copolymerization of the monomer which has this functional group to a copolymer.

[0025]As the monomer which has liquid crystal polyester and a functional group which has reactivity, and a monomer which contains a glycidyl group especially, unsaturated-carboxylic-acid glycidyl ester and/or unsaturation glycidyl ether are used preferably.

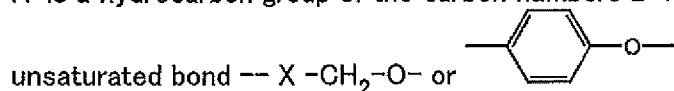
[0026]Unsaturated-carboxylic-acid glycidyl ester is a general formula preferably.



(R is a hydrocarbon group of the carbon numbers 2-13 which have an ethylene system unsaturated bond.) -- it is a compound expressed -- unsaturation glycidyl ether -- desirable --



R' is a hydrocarbon group of the carbon numbers 2-18 which have an ethylene system



It comes out. It is a compound expressed.

[0027]Specifically as unsaturated-carboxylic-acid glycidyl ester, For example, glycidyl acrylate, glycidyl methacrylate, itaconic acid diglycidyl ester, butene tricarboxylic acid triglycidyl ester, p-styrene carboxylic acid glycidyl ester, etc. can be mentioned. As unsaturation glycidyl ether, vinyl glycidyl ether, allyl glycidyl ether, 2-methyl allyl glycidyl ether, methacrylic glycidyl ether, styrene p-glycidyl ether, etc. are illustrated, for example.

[0028]The copolymer (B) which has the above-mentioned liquid crystal polyester and a functional group which has reactivity is a copolymer which contains an unsaturated-carboxylic-acid glycidyl ester unit and/or an unsaturation glycidyl ether unit 0.1 to 30% of the weight preferably.

[0029]The copolymer (B) which has the above-mentioned liquid crystal polyester and a functional group which has reactivity may be thermoplastics, or may be rubber, and may be thermoplastics and a mixture of rubber. The rubber in which the thermal stability of a Plastic solid and pliability of the film obtained using this liquid-crystal-polyester-resin constituent or a sheet are excellent is more preferred.

[0030]The amount of heat of fusion of a crystal of the copolymer (B) which has still more preferably the above-mentioned liquid crystal polyester and a functional group which has reactivity is a copolymer of less than 3 J/g. As a copolymer (B), the thing of 3-70 has preferred Mooney viscosity, the thing of 3-30 is still more preferred, and especially the thing of 4-25 is preferred. Mooney viscosity here says the value measured using a 100 ** large rotor according to JIS K6300. The thermal stability of a constituent and pliability may fall that it is outside these ranges.

[0031]Rubber here corresponds to the polymeric material which has rubber elasticity at the room temperature in a new edition polymers dictionary (the edited by Society of Polymer

Science, Japan, the 1988 publication, Asakura Publishing), and as the example, crude rubber, a butadiene polymer, and Butadiene Styrene (a random copolymer.) a block copolymer (SEBS rubber or SBS rubber is included), a graft copolymer, etc. are contained altogether -- or the hydrogenation thing. An isoprene polymer, a chlorobutadiene polymer, Butadiene Acrylonitrile, An isobutylene polymer, isobutylene-butadiene copolymer rubber, an isobutylene-isoprene copolymer, Acrylic acid ester ethylene system copolymer rubber, ethylene propylene rubber rubber, Ethylene-butene copolymer rubber, ethylene-propylene-styrene copolymer rubber, Styrene isoprene copolymer rubber, a styrene butylene copolymer, Styrene ethylene propylene rubber rubber, perfluoro rubber, Fluorine rubber, chloroprene rubber, isobutylene isoprene rubber, silicone rubber, ethylene-propylene-non-conjugated diene copolymer rubber, thiol rubber, polysulfide rubber, polyurethane rubbers, polyether rubber (for example, polypropylene oxide etc.), Epichlorhydrin rubber, a polyester elastomer, a polyamide elastomer, etc. are mentioned. Especially, an acrylic acid ester ethylene system copolymer is used preferably, and acrylic acid (meta) ester ethylene system copolymer rubber is still more preferred.

[0032]These rubber Mr. substances could be built with what kind of manufacturing methods (for example, an emulsion polymerization method, a solution polymerization method, etc.) and what kind of catalysts (for example, a peroxide, trialkylaluminium, lithium halide, a nickel series catalyst, etc.).

[0033]And in this invention, the rubber as a copolymer (B) is rubber which has liquid crystal polyester and a functional group which has reactivity in the above rubbers. In this rubber, especially as a method of introducing into rubber liquid crystal polyester and the functional group which has reactivity, it is not limited and can carry out by the well-known method. For example, it is also possible to introduce the monomer which has this functional group by copolymerization in the synthetic stage of rubber, and it is also possible to carry out the graft copolymerization of the monomer which has this functional group to rubber.

[0034]As an example of a copolymer (B) of having liquid crystal polyester and a functional group which has reactivity, as rubber which has an epoxy group, (Meta) Acrylic acid ester ethylene-(unsaturated-carboxylic-acid glycidyl ester and/or unsaturation glycidyl ether) copolymer rubber can be mentioned.

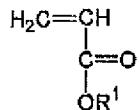
[0035]Acrylic ester (meta) is ester obtained from acrylic acid or methacrylic acid, and alcohol here. As alcohol, alcohol with 1-8 carbon atoms is preferred. (Meta) As an example of acrylic ester, Methyl acrylate, methyl methacrylate, n-butyl acrylate, n-butyl methacrylate, tert-butyl acrylate, tert-butyl methacrylate, 2-ethylhexyl acrylate, 2-ethylhexyl methacrylate, etc. can be mentioned. As acrylic ester (meta), one of them may be used alone or two or more sorts may be used together.

[0036]As copolymer rubber in the aforementioned example, preferably, (Meta) An acrylic ester unit surpasses 40 % of the weight, and it Less than 97 % of the weight, Less than 50 % of the weight of 3 % of the weight or more, an ethylene unit 45 to 70% of the weight still more preferably, An unsaturated-carboxylic-acid glycidyl ether unit and/or an unsaturation glycidyl ether unit are 0.5 to 20 % of the weight still more preferably 0.1 to 30% of the weight ten to 49% of the weight still more preferably. The thermal stability of a Plastic solid and mechanical properties of a film or a sheet which are acquired as it is outside the above-mentioned range may become insufficient.

[0037]This copolymer rubber can be manufactured by the usual method, for example, the mass polymerization by a free radical initiator, an emulsion polymerization, solution polymerization, etc. More than pressure 500 kg/cm^2 can manufacture a typical polymerization method by conditions with a temperature of 40-300 ** under existence of the method indicated to JP,46-45085,B, JP,61-127709,B, etc. and the polymerization initiator which generates a free radical.

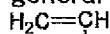
[0038]As rubber which can be used for the copolymer (B) in this invention, otherwise, The vinyl-aromatic-hydrocarbons compound-conjugated diene compound block copolymer rubber which has liquid crystal polyester, the acrylic rubber which has a functional group which has reactivity and liquid crystal polyester, and a functional group that has reactivity can also be illustrated.

[0039]It is a general formula (1) preferably as acrylic rubber here.

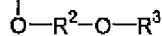


(1)

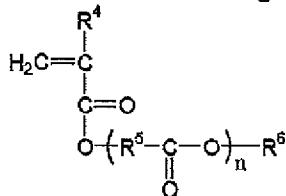
(R¹ shows an alkyl group or a cyano alkyl group with 1-18 carbon atoms among a formula.) -- general formula (2)



(2)



(as for an alkylene group with 1-12 carbon atoms, and R³, R² shows an alkyl group with 1-12 carbon atoms among a formula.) -- and general formula (3)



(3)

inside of formula, and R⁴ -- a hydrogen atom or a methyl group, and an alkylene group with 3-30 R⁵ carbon atoms. As for an alkyl group with 1-20 carbon atoms or its derivative, and n, R⁶ shows the integer of 1-20. What uses at least one sort of monomers chosen from the compound expressed as the main ingredients is mentioned.

[0040]As an example of acrylic acid alkyl ester expressed with the above-mentioned general formula (1), For example, methyl acrylate, ethyl acrylate, propylacrylate, Butyl acrylate, pentyl acrylate, hexyl acrylate, AKUCHIRU acrylate, 2-ethylhexyl acrylate, nonyl acrylate, decyl acrylate, dodecylacrylate, cyano ethyl acrylate, etc. can be mentioned.

[0041]As acrylic acid alkoxy alkyl ester expressed with the above-mentioned general formula (2), methoxy ethyl acrylate and ethoxyethyl acrylate, butoxy ethyl acrylate, ethoxy propylacrylate, etc. can be mentioned, for example. These one sort or two sorts or more can be used as the main ingredients of this acrylic rubber.

[0042]As a constituent of this acrylic rubber, at least one sort of monomers chosen from the compound expressed with above-mentioned general formula (1) - (3) if needed and a copolymerizable unsaturated monomer can be used. As an example of such an unsaturated monomer, styrene, alpha-methylstyrene, Acrylonitrile, halogenation styrene, a methacrylonitrile, acrylamide, Methacrylamide, vinylnaphthalene, N-methylolacrylamide, vinyl acetate, VCM/PVC, a vinylidene chloride, benzyl acrylate, methacrylic acid, itaconic acid, fumaric acid, maleic acid, etc. are mentioned.

[0043]The desirable constituent ratio of acrylic rubber which has liquid crystal polyester and a functional group which has reactivity, At least one sort of monomers [40.0 to 99.9 % of the weight of] chosen from the compound expressed with above-mentioned general formula (1) - (3). They are unsaturated-carboxylic-acid glycidyl ester and/or unsaturation glycidyl ether of 0.1 to 30.0 % of the weight, at least one sort of monomers chosen from the compound expressed with above-mentioned general formula (1) - (3), and 0.0 to 30.0 % of the weight of copolymerizable unsaturated monomers. The heat resistance and shock resistance of a constituent, and molding workability are good in the constituent ratio of this acrylic rubber being within the limits of the above, and it is desirable.

[0044]Do not limit the process in particular of this acrylic rubber, and, for example JP,59-113010,A, The method of polymerizing common knowledge which is indicated to JP,62-64809,A, JP,3-160008,A, WO95/04764, etc. can be used, and it can manufacture by an emulsion polymerization, suspension polymerization, solution polymerization, or bulk polymerization under existence of a radical initiator.

[0045]As vinyl-aromatic-hydrocarbons compound-conjugated diene compound block copolymer

rubber which it has, said liquid crystal polyester and the functional group which has reactivity preferably, (a) They are the rubber produced by epoxidating the block copolymer which consists of a sequence which makes a vinyl-aromatic-hydrocarbons compound a subject, and a sequence which makes the (b) conjugated diene compound a subject, or the rubber produced by epoxidating the hydrogenation thing of this block copolymer.

[0046]A vinyl-aromatic-hydrocarbons compound-conjugated diene compound block copolymer or its hydrogenation thing can be manufactured by the well-known method, for example, is indicated to JP,40-23798,B, JP,59-133203,A, etc.

[0047]As an aromatic hydrocarbon compound, for example, styrene, vinyltoluene, divinylbenzene, alpha-methylstyrene, p-methylstyrene, vinylnaphthalene, etc. can be mentioned, and styrene is especially preferred. As a conjugated diene compound, for example, butadiene, isoprene, Pirelli Wren, 1,3-pentadiene, 3-butyl-1,3-octadien, etc. can be mentioned, and butadiene or isoprene is preferred.

[0048]Acrylic acid (meta) ester ethylene-(unsaturated-carboxylic-acid glycidyl ester and/or unsaturation glycidyl ether) copolymer rubber is used preferably as rubber used as a copolymer (B).

[0049]The rubber used as a copolymer (B) can be vulcanized if needed, and can be used as vulcanized gum. Although vulcanization of the above-mentioned acrylic acid (meta) ester ethylene-(unsaturated-carboxylic-acid glycidyl ester and/or unsaturation glycidyl ether) copolymer rubber is attained by using polyfunctional organic acid, a polyfunctional amine compound, an imidazole compound, etc., It is not limited to these.

[0050]As an example of a copolymer (B) of having liquid crystal polyester and a functional group which has reactivity, The (a) ethylene unit as thermoplastics which has an epoxy group 50 to 99 % of the weight, An unsaturated-carboxylic-acid glycidyl ester unit and/or an unsaturation glycidyl ether unit (b) 0.1 to 30 % of the weight, (c) ethylene system unsaturation ester compound unit can mention preferably the epoxy group content ethylenic copolymer which consists of 0 to 50 % of the weight 0.5 to 20% of the weight.

[0051]As an ethylene system unsaturation ester compound (c), Carboxylic acid vinyl ester [, such as vinyl acetate vinyl propionate, methyl acrylate, ethyl acrylate, butyl acrylate, methyl methacrylate, ethyl methacrylate, and butyl methacrylate,], alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester etc. are mentioned. Especially vinyl acetate, methyl acrylate, and ethyl acrylate are preferred.

[0052]As an example of this epoxy group content ethylenic copolymer, For example, the copolymer which consists of an ethylene unit and a glycidyl methacrylate unit, The copolymer which consists of an ethylene unit, a glycidyl methacrylate unit, and a methyl acrylate unit, The copolymer etc. which consist of the copolymer and ethylene unit which consist of an ethylene unit, a glycidyl methacrylate unit, and an ethyl acrylate unit, a glycidyl methacrylate unit, and a vinyl acetate unit are mentioned.

[0053]The melt index of this epoxy group content ethylenic copolymer (it may be hereafter called MFR.) JIS K6760, 190 **, and 2.16 kg loads -- desirable -- 0.5-100 -- it is 2 ~ 50 F-10 minutes still more preferably for F-10 minutes. Although a melt index may be outside this range, if a melt index exceeds 100 F-10 minutes, in respect of mechanical properties when a constituent is used, undesirably, compatibility with liquid crystal polyester of an ingredient (A) is inferior in it, and it is not preferred [melt index] less than [0.5F-10 minute].

[0054]The thing of the range of 10 ~ 1300 kg/cm² has a preferred rate of flexural rigidity, and this epoxy group content ethylenic copolymer has a still more preferred thing of 20 ~ 1100 kg/cm². The rate of flexural rigidity may become insufficient [the molding workability or mechanical properties of a constituent] for it to be outside this range, and is not preferred.

[0055]This epoxy group content ethylenic copolymer is usually manufactured in an unsaturated epoxy compound and ethylene by the high voltage radical polymerization method which carries out copolymerization the bottom of existence of a radical generator, 500~4000 atmospheres, and under existence of a solvent suitable at 100~300 ** and a chain transfer agent, or absence. An unsaturated epoxy compound and a radical generator are mixed in polyethylene, and it is made

also by the method of carrying out melting graft copolymerization in an extrusion machine.

[0056]The liquid-crystal-polyester-resin constituent mentioned as a desirable example of a liquid crystalline polymer of using by this invention is a resin composition which uses as a disperse phase the copolymer which has a functional group which makes (A) liquid crystal polyester a continuous phase, and has (B) liquid crystal polyester and reactivity. When liquid crystal polyester is not a continuous phase, the heat resistance of the film which uses a liquid-crystal-polyester-resin constituent, chemical resistance, etc. may fall remarkably.

[0057]In the resin composition of the copolymer and liquid crystal polyester which have such a functional group, although the details of a mechanism are unknown, A reaction occurs between the ingredients (A) (B) of this constituent, while an ingredient (A) forms a continuous phase, an ingredient (B) carries out fine dispersion, therefore it is thought that the moldability of this constituent improves.

[0058]One embodiment of this liquid-crystal-polyester-resin constituent, 56.0 to 99.9 % of the weight of liquid crystal polyester preferably (A) 65.0 to 99.9 % of the weight, It is a resin composition as for which 44.0 to 0.1 % of the weight of copolymers which have a functional group which has 70 to 98 % of the weight and (B) liquid crystal polyester, and reactivity contain 30 to 2 % of the weight still more preferably 35.0 to 0.1% of the weight preferably still more preferably. Heat resistance, chemical resistance, etc. of a film which are obtained from this constituent as an ingredient (A) is less than 56.0 % of the weight may fall. If an ingredient (A) exceeds 99.9 % of the weight, the molding workability of this constituent may fall, and it will become expensive also in price.

[0059]The well-known method can be used as a method of manufacturing this liquid-crystal-polyester-resin constituent. For example, each ingredient is mixed by solution states and the method of evaporating a solvent or settling in a solvent is mentioned. In view of an industrial standpoint, the method of kneading each ingredient by a molten state is preferred. Kneading apparatus currently generally used, such as an extrusion machine of one axis or two axes and various kinds of kneaders, can be used for melt kneading. The high kneading machine of two axes is especially preferred. On the occasion of melt kneading, the range of 200-360 ** is desirable still more preferred, and the cylinder preset temperature of a kneading apparatus is 230-350 **.

[0060]Each ingredient may mix each ingredient uniformly with a tumbler or a device like a Henschel mixer beforehand, when kneading, when required, mixing can be excluded, and the method of carrying out constant feeding to a kneading apparatus separately, respectively can also be used.

[0061]In the liquid crystalline polymer used for this invention, If needed A spray for preventing static electricity, an organic bulking agent, an antioxidant, a thermostabilizer, light stabilizer, Various kinds of additive agents, such as mold release improving agents, such as fire retardant, lubricant, inorganic matter or organic system colorant, a rust-proofer, a cross linking agent, a foaming agent, a fluorescence agent, a smooth surface agent, a surface gloss improving agent, and a fluoro-resin, can be added in the inside of a manufacturing process, or a subsequent work process.

[0062]As a film which consists of a liquid crystalline polymer used by this invention, The T-die method which extrudes melting resin and rolls round this liquid crystalline polymer from a T die, for example, The film or sheet obtained by the inflation forming-membranes method which extrudes the extruder which installed the annular die to melting resin cylindrical, is cooled, and is rolled round, Uniaxial stretching, the film produced by carrying out biaxial stretching, or a sheet can also be further used for the film obtained by the heat pressing method or the solvent cast method, a sheet, or the sheet obtained by injection molding process or an extrusion method. Without passing through the process of kneading beforehand in the case of injection molding, extrusion molding, etc., the dry blend of the pellet of an ingredient can be carried out at the time of shaping, melt molding can be carried out, and a film or a sheet can also be obtained.

[0063]In a T-die method, the uniaxial stretched film rolled round and obtained or a biaxially oriented film is used preferably, extending the melting resin extruded through the T die in the direction of a winder (longitudinal direction).

[0064]Although the setups of the extrusion machine at the time of membrane formation of an

uniaxial stretched film can be suitably set up according to the presentation of a constituent, cylinder preset temperature has the preferred range of 200–360 **, and its range which is 230–350 ** is still more preferred. The pyrolysis of a constituent does not arise that it is outside this range, or membrane formation may become difficult and is not preferred.

[0065]As for the slit spacing of a T die, 0.2–2.0 mm is preferred, and its 0.2–1.2 mm is still more preferred. The things of the range of 1.1–40 are 10–40 desirable still more preferably, and the draft ratio of an uniaxial stretched film is 15–35 especially preferably.

[0066]Draft ratio here means the value which **(ed) the cross-section area of T die slit by the film cross section product of the field vertical to a longitudinal direction. Film strength is insufficient in draft ratio being less than 1.1, and if draft ratio exceeds 45, the surface smoothness of a film may become insufficient, and it is not desirable. The draft ratio can control and set up the setups of an extrusion machine, a coiling speed, etc.

[0067]The setups of the extrusion machine as membrane formation of an uniaxial stretched film with same biaxially oriented film, Cylinder preset temperature preferably Namely, the range of 200–360 **, It is still more desirable, the slit spacing of the range of 230–350 ** and a T die is preferred, and melt extruding of this constituent is performed in 0.2–1.2 mm, How to extend simultaneously the melting object sheet extruded from the T die to a longitudinal direction and a longitudinal direction, and a perpendicular direction (the direction of Yokote), Or it is obtained by the method etc. of the serial extension which extends first the melting object sheet extruded from the T die to a longitudinal direction, and extends this extension sheet from a tenter under a 100–300 ** elevated temperature within the same process subsequently to the direction of Yokote.

[0068]When obtaining a biaxially oriented film, the 1.2 to 20 times as many ranges of the draw ratio are preferred in 1.2 to 20 times, and the direction of Yokote to a longitudinal direction. The intensity of this constituent film may become being outside the above-mentioned range insufficient, or it may become difficult to obtain the film of uniform thickness, and a draw ratio is not preferred.

[0069]The tubular blown film etc. which are produced by forming the melting object sheet extruded from the die of the cylindrical shape with a tubular film process are used preferably.

[0070]Namely, the liquid-crystal-polyester-resin constituent obtained by the above-mentioned method, The melt kneading extrusion machine provided with the die of an annular slit is supplied, in 200–360 **, melt kneading is performed at 230–350 ** still more preferably, cylinder preset temperature serves as a cylindrical film desirable from the annular slit of an extrusion machine, and melting resin is extruded in the upper part or a lower part. The diameter of 0.2–2 mm and an annular slit of an annular slit interval is usually 25–600 mm preferably 20–1000 mm 0.1–5 mm.

[0071]While applying a draft to the melting resin film by which melt extruding was carried out at a longitudinal direction (MD), the expansion extension of the film can be made to carry out in a longitudinal direction and the right-angled direction of Yokote (TD) by blowing air or inactive gas, for example, nitrogen gas etc., from the inside of this cylindrical film.

[0072]In inflation molding (membrane formation), 1.5–10, and desirable MD draw magnification of a desirable blow ratio are 1.5–40. Thickness may be uniform in the setups at the time of inflation membrane formation being outside the above-mentioned range, and it may become difficult to obtain the liquid-crystal-polyester-resin constituent film of high intensity without wrinkles.

[0073]Air cooling or after making it water-cool, the expanded film passes a nip roll and usually takes over the circumference.

[0074]thickness with a tubed melting object film uniform according to the presentation of a liquid-crystal-polyester-resin constituent on the occasion of inflation membrane formation -- the surface -- conditions which expand in the smooth state can be chosen.

[0075]Although there is no restriction in particular in the thickness of the film which consists of a liquid crystalline polymer in this invention, 3–1000 micrometers is 5–200 micrometers still more preferably preferably. The film which consists of a liquid crystalline polymer obtained by this method is excellent in heat resistance and electrical machinery insulation, a dielectric constant and a dielectric dissipation factor are low, it is lightweight, thinning is possible for it, and its mechanical strength is good, it is supple, and, moreover, cheap.

[0076]In this invention, a surface treatment can be beforehand performed to the surface of the film which consists of liquid crystalline polymers. As such a surface treatment method, corona discharge treatment, plasma treatment, flame treatment, sputtering processing, solvent treatment, ultraviolet treatment, grinding treatment, infrared processing, ozonization, etc. are mentioned, for example.

[0077]The film capacitor of this invention uses as a dielectric the film which consists of a liquid crystalline polymer which shows optical anisotropy at the time of melting, it is characterized by becoming considering a metallic foil or a metal evaporated film as an electrode, and what laminates the film which consists of the above-mentioned liquid crystalline polymer, and a metallic foil and a metal evaporated film is mentioned. Especially as a metallic foil here, although it does not limit, alloy foil, such as copper foil, aluminium foil, tinfoil, gold foil, silver leaf, stainless steel foil or nickel chromium, and copper **NIKKERU, etc. can be mentioned, for example. Especially, copper foil, aluminium foil, tinfoil, and gold foil are preferred. Especially as a metal evaporated film, it cannot limit and a conductive good metal evaporated film can be suitably chosen according to the purpose. As an example of this metal evaporated film, copper, aluminum, tin, gold, silver, stainless steel, or the vacuum evaporation film of an alloy like nickel chromium can be mentioned. Especially, the vacuum evaporation film of copper, aluminum, and gold is preferred. In this invention, the layered product of a metal evaporated film and a metallic foil may be used.

[0078]Although the gestalt in particular of the film capacitor of this invention is not limited, For example, the film which consists of a metallic foil and a liquid crystalline polymer is piled up by turns, The structure around which the lead wound about the thing of the length direction of a metallic foil which welded in the half mostly and was connected by soldering or sticking by pressure, A metallic foil is shifted crosswise [of this film] at right and left to a tab form and the film which consists of liquid crystalline polymers, The EKUSUTENDO foil type which connected the lead end of line to the field with soldering etc. after making it overflow from the film which consists of liquid crystalline polymers and winding about and which is structure, Or it cuts and puts upon a fixed size, without rolling about the film and metallic foil which consist of liquid crystalline polymers, and carrying out them, and the gestalt of the laminated type etc. which give Metallikon and attach a lead is mentioned.

[0079]The composition of the film capacitor in this invention, For example, the film / metallic foil, or the metal evaporated film which consists of liquid crystalline polymers, The film which consists of the film / metallic foil or a metal evaporated film / a liquid crystalline polymer which consists of liquid crystalline polymers, The film which consists of the film / metallic foil, or the metal evaporated film/thermoplastics (however, except for a liquid crystalline polymer) which consists of liquid crystalline polymers, Combination, such as a film which consists of a film/thermoplastics (however, except for a liquid crystalline polymer) which consists of the film / metallic foil or a metal evaporated film / a liquid crystalline polymer which consists of a film/a liquid crystalline polymer which consists of thermoplastics (however, except for a liquid crystalline polymer), is mentioned. Especially, the composition of film ** which consists of the film / metallic foil or a metal evaporated film / a liquid crystalline polymer which consists of liquid crystalline polymers is preferred.

[0080]An adhesives layer can be made to intervene between each constituent of a film capacitor in this invention. As these adhesives, the adhesives for dry laminations, the adhesives for melting extrusion, or resin can be used according to the purpose.

[0081]The gestalt in particular at the time of using the film capacitor of this invention cannot be limited, and can be used with any gestalt of the shape of a cut film, such as a ribbon base, continuation film state, and the A4 version, or the rolled form which rolled the cut film, for example.

[0082]

[Example]Hereafter, an example explains this invention.

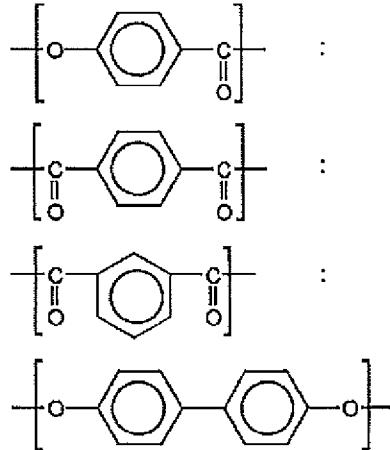
(1) 8.3 kg (60 mol) of liquid-crystal-polyester (i)p-acetoxybenzoic acid of an ingredient (A), Teaching 2.49 kg (15 mol) of terephthalic acid, 0.83 kg (5 mol) of isophthalic acid, and 5.45 kg (20.2 mol) of 4,4'-diacetoxypiphenyl to a polymerization tank with a tandem-type impeller, and

agitating under a nitrogen gas atmosphere, temperature up was carried out and it was made to polymerize at 330 ** for 1 hour. While a condenser tube liquefies and removed [collect and] the acetic acid gas which carries out a byproduction in the meantime, it was made to polymerize under powerful churning. Then, the system was cooled gradually and the polymer obtained at 200 ** was taken out out of the system. The hammermill made from Hosokawa Micron ground this obtained polymer, and it was considered as a particle of 2.5 mm or less. By carrying out 3 time processings of this at 280 ** under a nitrogen gas atmosphere in a rotary kiln further, all the aromatic polyester which consists of the following repeated structure unit of the particle state whose flow temperature is 324 ** was obtained.

[0083]Flow temperature is a basis of load 100 kgf/cm² here about the resin heated with 4 ** the heating rate for /using the Shimazu quantity-ized type flow tester CFT-500 type, When extruding from a nozzle 1 mm in inside diameter, and 10 mm in length, melt viscosity says the thing of the temperature which shows 48000 poise.

[0084]This liquid crystal polyester is written as A-1 below. This polymer showed optical anisotropy above 340 ** under application of pressure. The repeated structure unit of the liquid crystal polyester A-1 is as follows.

[0085]



[0086](2) Ingredient (B)

(i) According to the method of a statement, the rubber of methyl acrylate / ethylene / glycidyl methacrylate =59.0/38.7/2.3 (weight ratio), Mooney viscosity =15, and amount of heat of fusion <1 J/g of a crystal was obtained in the Example 5 of JP,61-127709,A. This rubber may be called B-1 for short below. Mooney viscosity is the value measured using 100 ** and a large rotor according to JIS K6300 here. DSC was used for the amount of heat of fusion of a crystal, and from -150 ** to 100 **, by a part for 20 **/, it carried out temperature up of the sample, and asked for it.

[0087](3) It measured in the following ways about the physical-properties measuring method profitable **** film.

(i) Tension physical properties : according to JIS Z1727, the tension physical properties of MD directions and a TD direction were measured using the No. 2 type specimen.

Flexibility : (ii) The charge of a laminated material is started to the MD directions of a laminated film, and a TD direction, The MIT bending tester Folding Endurance Tester MIT-D type Made from an Oriental energy machine is used about each, Based on JIS-p-8115, the bend test was done by load 1Kgf, 135 bending angles, and 1 mm, and 175 folded surface curvature-radius bending speed / min.

[0088](iii) Water absorption : based on ASTM D570, the water absorption in the inside of the film after 23 ** and 24hr was searched for.

(iv) Volume resistivity : based on JIS C2318, it asked for the volume resistivity of the film by the measurement temperature of 23 **, 50% of humidity RH, and impressed-electromotive-force

100Vx1min.

[0089](v) Based on a dielectric constant, the dielectric dissipation factor frequency of 1 kHz, and 1 MHz: JIS C2318, it asked by the measurement temperature of 23 **, and 50% of humidity RH. Frequency of 1 GHz, 10 GHz: Based on the triplate line resonance method, it asked by the measurement temperature of 23 **, and 50% of humidity RH.

[0090]Example 1A-1 80 % of the weight and B-1 Melt kneading was performed for 20 % of the weight with the cylinder preset temperature of 350 **, and the screw speed of 200 rpm using the product TEX[made from Japanese-made Steel]-30 type twin screw extruder, and the constituent was obtained. The flow beginning temperature of this constituent was 328 **. This constituent showed optical anisotropy above 340 **. The pellet of this constituent is supplied to the single screw extruder of 60 mmphi provided with the cylinder die, At the cylinder preset temperature of 350 **, and the number of rotations of 60 rpm, carry out melt kneading and 50 mm in diameter. Melting resin is extruded upwards from a with the lip interval of 1.0 mm, and a die preset temperature of 355 ** cylinder die, The film which it lets pass to a nip roll and is taken over by taking over speed 75 m/min after pressing dry air fit to the centrum of this cylindrical film in that case, expanding a cylindrical film and making it cool next, and is used for a film capacitor and which consists of liquid crystalline polymers was obtained.

[0091]Under the present circumstances, as for the draw magnification of film MD directions, 4.1 and the film thickness of 20.5 and a blow ratio were 11 micrometers. This film may be called F-1 for short below.

[0092]The tensile strength of F-1 was MD25kg/mm² and TD9kg/mm², and elongation percentage was MD2% and TD11%. By the MIT bend test of F-1, the film did not fracture MD and TD after 100,000 times crookedness. As for film length, MD and TD did not change after 200 ** and 2-hour heating, but heat resistance was dramatically excellent in the heating test of F-1. The water absorption of F-1 is 0.04%, water absorption is very low and the volume resistivity is 4×10^{15} omega.

Electric insulation was also good.

[Table 1]

周波数	誘電率	誘電正接
1 KHz	3. 5	0. 0 2
1 MHz	3. 8	0. 0 4
1 GHz	2. 9	0. 0 2
10 GHz	2. 9	0. 0 1

[0093]The dielectric constant in each frequency and the value of a dielectric dissipation factor are as being shown in Table 1. F-1 is understood that a dielectric constant and the value of a dielectric dissipation factor are dramatically low also in high frequency. F-1 made into 5-cm-wide tape shape using the slitting machine, and 6.5 micrometers in thickness. A 5-cm-wide aluminum foil tape can be piled up alternately with lamination, and a film capacitor can be obtained by the way wind, and a lead carries out the time of the thing of the length direction of this aluminum foil connected by soldering, and carries out it in the center mostly.

[0094]

[Effect of the Invention]By this invention, heat resistance, a high frequency characteristic, electrical machinery insulation, etc. are excellent, and are supple, Water absorption is low, the film capacitor which uses the layered product of the film capacitor which uses the liquid crystalline polymer which shows optical anisotropy at the time of melting lightweight and cheap thin moreover especially a liquid crystalline polymer, and a metallic foil or a metal evaporated film is obtained, and it can apply broadly in the industrial world.

[Translation done.]

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002-64030

(P2002-64030A)

(43)公開日 平成14年2月28日(2002.2.28)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	チ-マ-ト*(参考)
H 01 G 4/18		H 01 G 4/18	3 3 0 Z 4 J 0 0 2
	3 3 0	C 08 L 67/03	5 E 0 8 2
C 08 L 67/03		(C 08 L 67/03	
H 01 G 4/015		23: 08)	
// (C 08 L 67/03		H 01 G 4/24	3 2 1 D
		審査請求 未請求 請求項の数18 OL (全 12 頁)	最終頁に続く

(21)出願番号 特願2000-248276(P2000-248276)

(71)出願人 000002093

(22)出願日 平成12年8月18日(2000.8.18)

住友化学工業株式会社
大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

(72)発明者 山口 登造

茨城県つくば市北原6 住友化学工業株式
会社内

(72)発明者 熊田 浩明

茨城県つくば市北原6 住友化学工業株式
会社内

(74)代理人 100093285

弁理士 久保山 隆 (外2名)

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 フィルムコンデンサー

(57)【要約】

ルムコンデンサー。

【課題】耐熱性、高周波特性、電機絶縁性などが優れ、柔軟性があり、吸水率が低く、軽量で薄いフィルムコンデンサーを提供する。

【解決手段】〔1〕溶融時に光学的異方性を示す液晶性ポリマーからなるフィルムを用いてなるフィルムコンデンサー。

〔2〕溶融時に光学的異方性を示す液晶性ポリマーからなるフィルムを誘電体とし、金属箔または金属蒸着膜を電極としてなるフィルムコンデンサー。

〔3〕溶融時に光学的異方性を示す液晶性ポリマーが、(A)液晶ポリエステルを連続相とし、(B)液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有する共重合体を分散相とする液晶ポリエステル樹脂組成物である〔1〕または〔2〕に記載のフィルムコンデンサー。

〔4〕溶融時に光学的異方性を示す液晶性ポリマーが、(A)液晶ポリエステル56.0~99.9重量%、および(B)液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有する共重合体44.0~0.1重量%を溶融混練して得られる組成物である〔1〕または〔2〕に記載のフィ

【特許請求の範囲】

【請求項1】溶融時に光学的異方性を示す液晶性ポリマーからなるフィルムを用いてなるフィルムコンデンサー。

【請求項2】溶融時に光学的異方性を示す液晶性ポリマーからなるフィルムを誘電体とし、金属箔または金属蒸着膜を電極としてなるフィルムコンデンサー。

【請求項3】金属箔が銅箔、アルミニウム箔、錫箔、金箔、または銀箔であり、金属蒸着膜が銅、アルミニウム、錫、金、銀の少なくとも1種を蒸着成分とすることを特徴とする請求項2記載のフィルムコンデンサー。

【請求項4】液晶性ポリマーからなるフィルムと、金属箔または金属蒸着膜との間に、接着剤層が介在することを特徴とする請求項2または3記載のフィルムコンデンサー。

【請求項5】溶融時に光学的異方性を示す液晶性ポリマーが、(A)液晶ポリエステルを連続相とし、(B)液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有する共重合体を分散相とする液晶ポリエステル樹脂組成物であることを特徴とする請求項1～4のいずれかに記載のフィルムコンデンサー。

【請求項6】溶融時に光学的異方性を示す液晶性ポリマーが、(A)液晶ポリエステル56.0～99.9重量%、および(B)液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有する共重合体44.0～0.1重量%を溶融混練して得られる組成物であることを特徴とする請求項1～4のいずれかに記載のフィルムコンデンサー。

【請求項7】液晶ポリエステルと反応性を有する官能基が、オキサゾリル基、エポキシ基またはアミノ基であることを特徴とする請求項5または6記載のフィルムコンデンサー。

【請求項8】液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有する共重合体(B)が、不飽和カルボン酸グリシジルエステル単位および/または不飽和グリシジルエーテル単位を0.1～30重量%含有する共重合体であることを特徴とする請求項5または6記載のフィルムコンデンサー。

【請求項9】液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有する共重合体(B)が、結晶の融解熱量が3J/g未満の共重合体であることを特徴とする請求項5～8のいずれかに記載のフィルムコンデンサー。

【請求項10】液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有する共重合体(B)のムーニー粘度が、3～70の範囲であることを特徴とする請求項5～9のいずれかに記載のフィルムコンデンサー。ここでいうムーニー粘度は、JIS K6300に準じて100℃でラージロータ用いて測定した値をいう。

【請求項11】液晶ポリエ斯特ルと反応性を有する官能基を有する共重合体(B)が、エポキシ基を有するゴムであることを特徴とする請求項5～10のいずれかに記

10

20

30

40

50

載のフィルムコンデンサー。

【請求項12】エポキシ基を有するゴムが、(メタ)アクリル酸エステルーエチレーン(不飽和カルボン酸グリシジルエステルおよび/または不飽和グリシジルエーテル)共重合体ゴムからなることを特徴とする請求項11記載のフィルムコンデンサー。

【請求項13】(メタ)アクリル酸エステルが、メチルアクリレート、メチルメタクリレート、n-ブチルアクリレート、n-ブチルメタクリレート、tert-ブチルアクリレート、tert-ブチルメタクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート、2-エチルヘキシルメタクリレートから選ばれる少なくとも1種を含むものであることを特徴とする請求項12記載のフィルムコンデンサー。

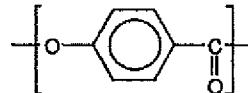
【請求項14】液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有する共重合体(B)が、エポキシ基を有する熱可塑性樹脂であることを特徴とする請求項5～10のいずれかに記載のフィルムコンデンサー。

【請求項15】エポキシ基を有する熱可塑性樹脂が、

(a)エチレン単位が50～99重量%、(b)不飽和カルボン酸グリシジルエステル単位および/または不飽和グリシジルエーテル単位が0.1～30重量%、

(c)エチレン系不飽和エステル化合物単位が0～50重量%からなるエポキシ基含有エチレン共重合体であることを特徴とする請求項14記載のフィルムコンデンサー。

【請求項16】液晶ポリエステル(A)が、下記の繰り返し構造単位を少なくとも全体の30モル%含むものであることを特徴とする請求項5～15のいずれかに記載のフィルムコンデンサー。



【請求項17】液晶ポリエステル(A)が、芳香族ジカルボン酸と芳香族ジオールと芳香族ヒドロキシカルボン酸とを反応させて得られるものであることを特徴とする請求項5～16のいずれかに記載のフィルムコンデンサー。

【請求項18】液晶ポリエ斯特爾(A)が、異種の芳香族ヒドロキシカルボン酸の組合せを反応させて得られるものであることを特徴とする請求項5～15のいずれかに記載のフィルムコンデンサー。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、液晶性ポリマーからなるフィルムを用いてなるフィルムコンデンサーに関する。

【0002】

【従来の技術】フィルムコンデンサーは、一般に、プラスチックフィルムを誘電体とし、電極に金属箔や金属蒸

着膜を用い、これらを重ねて巻き回して作られる。フィルムコンデンサーは、テレビ、ラジオ、音響機器を始め、船舶、飛行機、宇宙機器、車輛等の電子計測器、無線通信機に、または、電気機器の小型モーターや蛍光灯、水銀灯などに幅広く用いられている。しかしながら、ポリエチレン、ポリプロピレンのようなポリオレフィン、ポリエチレンテレフタレートのようなポリエステル、弗素樹脂、ポリカーボネートなどを誘電体とする従来のフィルムコンデンサーは、市場からの更なる要求を十分には満たしていないのが現状である。例えば、ポリオレフィンを誘電体として使用した場合には、耐熱性が不十分であり、はんだ付けを行うことはできない。ポリエステルを使用した場合もやはり耐熱性は不十分であり、また、吸水率も高いため、高湿下ではフィルムが変形するという問題があった。ポリ四弗化エチレンを使用した場合には、比重が高い、非常に高価である、用済み後の燃焼処理時に弗素含有ガスを発生するなどの問題点が指摘されている。また、ポリカーボネートやポリスチレンを用いた場合には、やはり耐熱性が不十分とされている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、耐熱性、高周波特性、電機絶縁性などが優れ、柔軟性があり、吸水率が低く、軽量で薄く、しかも安価なフィルムコンデンサーを提供することにある。

【0004】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、このような問題を解決すべく鋭意検討を続け本発明に到達した。即ち本発明は、〔1〕溶融時に光学的異方性を示す液晶性ポリマーからなるフィルムを用いてなるフィルムコンデンサーに係るものである。さらに、本発明は、〔2〕溶融時に光学的異方性を示す液晶性ポリマーからなるフィルムを誘電体とし、金属箔または金属蒸着膜を電極としてなるフィルムコンデンサーに係るものである。また、本発明は、〔3〕液晶性ポリマーからなるフィルムと、金属箔または金属蒸着膜との間に、接着剤層が介在する〔1〕または〔2〕記載のフィルムコンデンサーに係るものである。さらに、本発明は、〔4〕溶融時に光学的異方性を示す液晶性ポリマーが、(A) 液晶ポリエステルを連続相とし、(B) 液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有する共重合体を分散相とする液晶ポリエステル樹脂組成物である〔1〕～〔3〕のいずれかに記載のフィルムコンデンサーに係るものである。また、本発明は、〔5〕溶融時に光学的異方性を示す液晶性ポリマーが、(A) 液晶ポリエステル 56.0～9.9重量%、および(B) 液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有する共重合体 44.0～0.1重量%を溶融混練して得られる組成物である〔1〕～〔3〕のいずれかに記載のフィルムコンデンサーに係るものである。

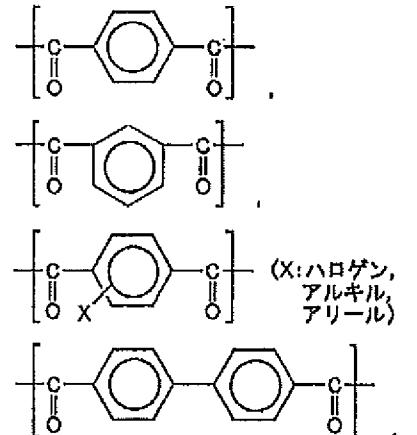
【0005】

【発明の実施の形態】以下、本発明を更に詳細に説明する。溶融時に光学的異方性を示す液晶性ポリマーは種々知られており、例えば全芳香族系のポリエステル、ポリイミド、ポリエスチルアミドなどや、それらを含有する樹脂組成物などが挙げられる。本発明においては、かかる液晶性ポリマーとして好ましくは液晶ポリエステルまたは液晶ポリエスチルを含有する組成物であり、成形加工性、得られるフィルムの性能の点から、本発明においては(A) 液晶ポリエステルを連続相とし(B) 液晶ポリエスチルと反応性を有する官能基を有する共重合体を分散相とする液晶ポリエスチル樹脂組成物を用いることがさらに好ましい。

【0006】ここでいう液晶ポリエスチルは、サーモトロピック液晶ポリマーと呼ばれるポリエスチルである。具体的には、(1) 芳香族ジカルボン酸と芳香族ジオールと芳香族ヒドロキシカルボン酸との組み合わせからなるもの、(2) 異種の芳香族ヒドロシカルボン酸の組み合わせからなるもの、(3) 芳香族ジカルボン酸と核置換芳香族ジオールとの組み合わせからなるもの、(4) ポリエチレンテレフタレートなどのポリエスチルに芳香族ヒドロキシカルボン酸を反応させて得られるもの、などが挙げられ、400℃以下の温度で異方性溶融体を形成するものである。なお、これらの芳香族ジカルボン酸、芳香族ジオール及び芳香族ヒドロキシカルボン酸の代わりに、それらのエスチル形成性誘導体が使用されることもある。

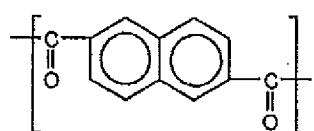
【0007】該液晶ポリエスチルの繰返し構造単位としては、下記の①芳香族ジカルボン酸に由来する繰返し構造単位、②芳香族ジオールに由来する繰返し構造単位、③芳香族ヒドロキシカルボン酸に由来する繰返し構造単位を例示することができるが、これらに限定されるものではない。

【0008】①芳香族ジカルボン酸に由来する繰り返し構造単位：

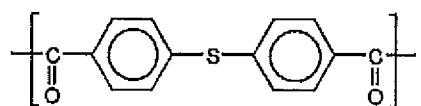
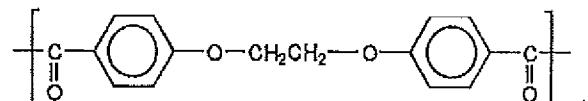


【0009】

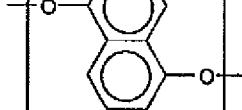
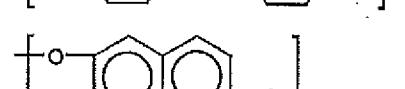
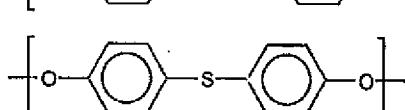
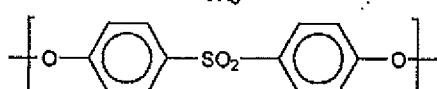
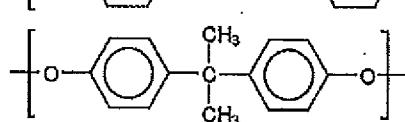
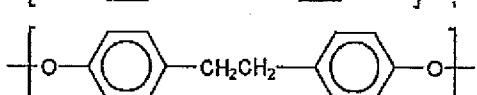
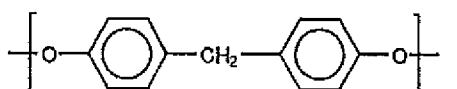
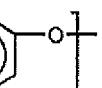
5



6

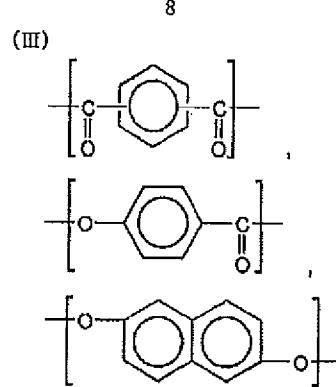
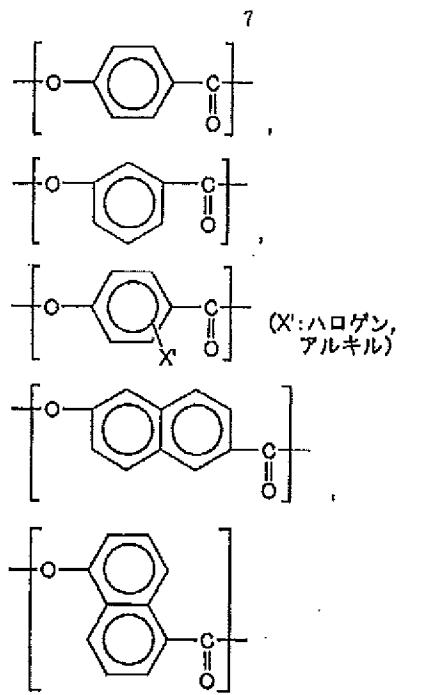


【0010】②芳香族ジオールに由来する繰返し構造単位：



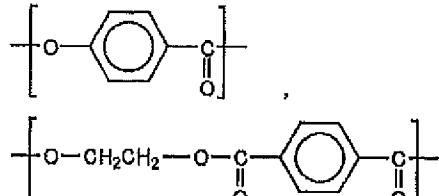
[0011]

* * * [0012] ⑨芳香族ヒドロキシカルボン酸に由来する
繰返し構造単位：



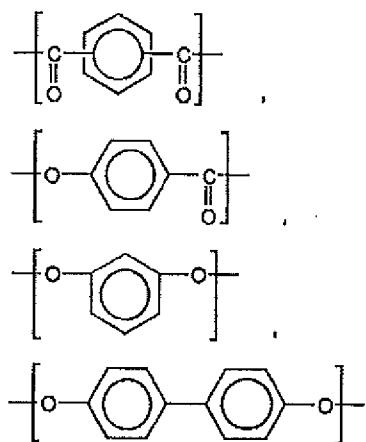
[0017]

(IV)

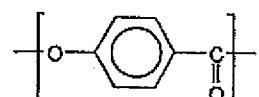


[0018]

(V)

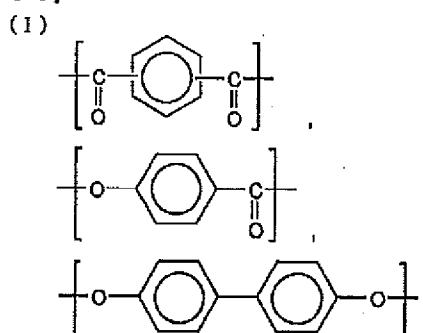


[0013] 耐熱性、機械的特性、加工性のバランスから特に好ましい液晶ポリエステルは

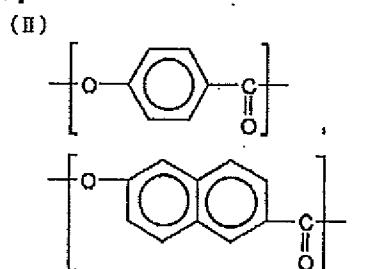


なる繰り返し構造単位を含むものであり、さらに好ましくは該繰り返し構造単位を少なくとも全体の30モル%以上含むものである。具体的には繰り返し構造単位の組み合わせが下記(I)～(VI)のいずれかのものが好ましい。

[0014]



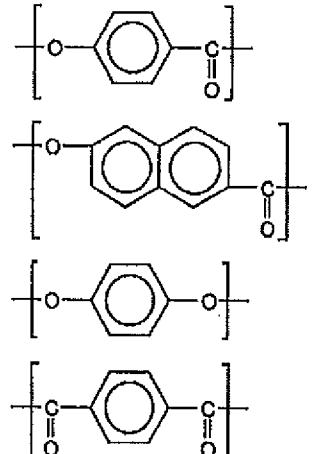
[0015]



[0016]

[0019]

(VI)

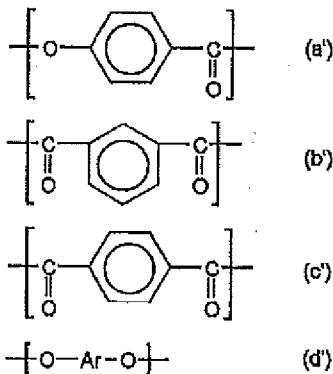


【0020】該液晶ポリエステル(I)～(VI)の製法については、例えば特公昭47-47870号公報、特公昭63-3888号公報、特公昭63-3891号公報、特公昭56-18016号公報、特開平2-51523号公報などに記載されている。これらの中で好ましくは(I)、(II)または(IV)の組合せであり、さらに好ましくは(I)または(II)の組み合せが挙げられる。

【0021】本発明における液晶ポリエステル樹脂組成物において、高い耐熱性が要求される分野には成分

(A)の液晶ポリエステルとして、下記の繰り返し単位(a')が30～80モル%、繰り返し単位(b')が0～10モル%、繰り返し単位(c')が10～25モル%、繰り返し単位(d')が10～35モル%からなる液晶ポリエステルが好ましく使用される。

【0022】



(式中、Arは2価の芳香族基である。)

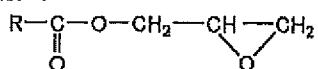
【0023】本発明における液晶ポリエステル樹脂組成物に用いられる成分(B)は、液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有する共重合体である。かかる液晶ポリエステルと反応性を有する官能基としては、液晶ポリエステルと反応性を有すれば何でもよく、具体的には、オキソソリル基やエポキシ基、アミノ基等が挙げられる。好ましくは、エポキシ基である。エポキシ基等は他の官能基の一部として存在していてもよく、そのような例としては例えばグリシジル基が挙げられる。

【0024】共重合体(B)において、かかる官能基を共重合体中に導入する方法としては特に限定されるものではなく、周知の方法で行うことができる。例えば共重合体の合成段階で、該官能基を有する单量体を共重合により導入することも可能であるし、共重合体に該官能基を有する单量体をグラフト共重合することも可能である。

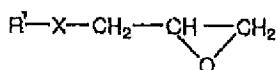
【0025】液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有する单量体、中でもグリシジル基を含有する单量体としては、不飽和カルボン酸グリシジルエステルおよび/または不飽和グリシジルエーテルが好ましく用いられる。

【0026】不飽和カルボン酸グリシジルエステルは好

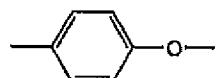
ましくは一般式



(Rはエチレン系不飽和結合を有する炭素数2～13の炭化水素基である。)で表される化合物であり、また不飽和グリシジルエーテルは好ましくは一般式



10 (R'はエチレン系不飽和結合を有する炭素数2～18の炭化水素基であり、Xは-O-CH₂-O-または



である。)で表される化合物である。

【0027】具体的には、不飽和カルボン酸グリシジルエステルとしては、例えばグリシジルアクリレート、グリシジルメタクリレート、イタコン酸ジグリシジルエステル、ブテントリカルボン酸トリグリシジルエステル、p-スチレンカルボン酸グリシジルエステルなどを挙げることができる。不飽和グリシジルエーテルとしては、例えばビニルグリシジルエーテル、アリルグリシジルエーテル、2-メチルアリルグリシジルエーテル、メタクリルグリシジルエーテル、ステレン-p-グリシジルエーテル等が例示される。

【0028】上記の液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有する共重合体(B)は、好ましくは、不飽和カルボン酸グリシジルエステル単位および/または不飽和グリシジルエーテル単位を0.1～30重量%含有する共重合体である。

【0029】また、上記の液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有する共重合体(B)は、熱可塑性樹脂であってもゴムであってもよいし、熱可塑性樹脂とゴムの混合物であってもよい。該液晶ポリエステル樹脂組成物を用いて得られるフィルムまたはシート等の成形体の熱安定性や柔軟性が優れるゴムがより好ましい。

【0030】さらに好ましくは、上記の液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有する共重合体(B)は、結晶の融解熱量が3J/g未満の共重合体である。また共重合体(B)としては、ムーニー粘度が3～70のものが好ましく、3～30のものがさらに好ましく、4～25のものが特に好ましい。ここでいうムーニー粘度は、JIS K6300に準じて100°Cラージローターを用いて測定した値をいう。これらの範囲外であると、組成物の熱安定性や柔軟性が低下する場合がある。

【0031】ここでいうゴムとは、新版高分子辞典(高分子学会編、1988年出版、朝倉書店)による室温にてゴム弾性を有する高分子物質に該当するものであり、その具体例としては、天然ゴム、ブタジエン重合体、ブタジエン-ステレン共重合体(ランダム共重合体、ブ

ック共重合体（S E B S ゴムまたはS B S ゴム等を含む）、グラフト共重合体などすべて含まれる）又はその水素添加物、イソブレン重合体、クロロブタジエン重合体、ブタジエンーアクリロニトリル共重合体、イソブチレン重合体、イソブチレンーブタジエン共重合体ゴム、イソブチレンーイソブレン共重合体、アクリル酸エステルーエチレン系共重合体ゴム、エチレンープロピレン共重合体ゴム、エチレンーブテン共重合体ゴム、エチレンープロピレンースチレン共重合体ゴム、スチレンーイソブレン共重合体ゴム、スチレンーブチレン共重合体、スチレンーエチレンーブロピレン共重合体ゴム、パーフルオロゴム、ふつ素ゴム、クロロブレンゴム、ブチルゴム、シリコーンゴム、エチレンープロピレンー非共役ジエン共重合体ゴム、チオールゴム、多硫化ゴム、ポリウレタンゴム、ポリエーテルゴム（例えばポリプロピレンオキシド等）、エビクロルヒドリンゴム、ポリエステルエラストマー、ポリアミドエラストマー等が挙げられる。中でも、アクリル酸エステルーエチレン系共重合体が好ましく用いられ、（メタ）アクリル酸エステルーエチレン系共重合体ゴムがさらに好ましい。

【0032】これらのゴム様物質は、いかなる製造法（例えば乳化重合法、溶液重合法等）、いかなる触媒（例えば過酸化物、トリアルキルアルミニウム、ハログン化リチウム、ニッケル系触媒等）でつくられたものでもよい。

【0033】そして本発明においては、共重合体（B）としてのゴムは、上記のようなゴムにおいて、液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有するゴムである。かかるゴムにおいて、液晶ポリエステルと反応性を有する官能基をゴム中に導入する方法としては、特に限定されものではなく、周知の方法で行うことができる。例えばゴムの合成段階で、該官能基を有する単量体を共重合により導入することも可能であるし、ゴムに該官能基を有する単量体をグラフト共重合することも可能である。

【0034】液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有する共重合体（B）の具体例として、エポキシ基を有するゴムとしては、（メタ）アクリル酸エステルーエチレンー（不飽和カルボン酸グリシジルエステルおよび／または不飽和グリシジルエーテル）共重合体ゴムを挙げることができる。

【0035】ここで（メタ）アクリル酸エステルとは、アクリル酸またはメタクリル酸とアルコールから得られるエステルである。アルコールとしては、炭素原子数1～8のアルコールが好ましい。（メタ）アクリル酸エステルの具体例としては、メチルアクリレート、メチルメタクリレート、n-ブチルアクリレート、n-ブチルメタクリレート、tert-ブチルアクリレート、tert-ブチルメタクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート、2-エチルヘキシルメタクリレートなどを挙げ

ることができる。なお、（メタ）アクリル酸エステルとしては、その1種を単独で使用してもよく、または二種以上を併用してもよい。

【0036】前記の具体例における共重合体ゴムとして、好ましくは、（メタ）アクリル酸エステル単位が40重量%をこえ97重量%未満、さらに好ましくは45～70重量%、エチレン単位が3重量%以上50重量%未満、さらに好ましくは10～49重量%、不飽和カルボン酸グリシジルエーテル単位および／または不飽和グリシジルエーテル単位が0.1～30重量%、さらに好ましくは0.5～20重量%である。上記の範囲外であると、得られるフィルムまたはシート等の成形体の熱安定性や機械的性質が不十分となる場合がある。

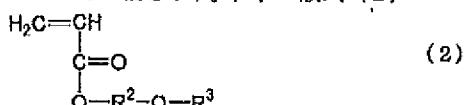
【0037】該共重合体ゴムは、通常の方法、例えばフリーラジカル開始剤による塊状重合、乳化重合、溶液重合などによって製造することができる。なお、代表的な重合方法は、特公昭46-45085号公報、特公昭61-127709号公報などに記載された方法、フリーラジカルを生成する重合開始剤の存在下、圧力500kg/cm²以上、温度40～300℃の条件により製造することができる。

【0038】本発明における共重合体（B）に使用できるゴムとして他には、液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有するアクリルゴムや、液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有するビニル芳香族炭化水素化合物ー共役ジエン化合物ブロック共重合体ゴムも例示することができる。

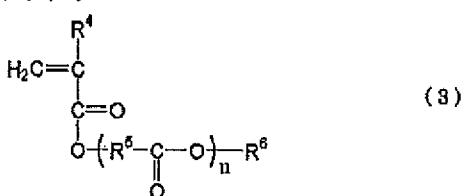
【0039】ここでいうアクリルゴムとして好ましくは、一般式（1）



（式中、R'は炭素原子数1～18のアルキル基またはシアノアルキル基を示す。）、一般式（2）



（式中、R²は炭素原子数1～12のアルキレン基、R³は炭素原子数1～12のアルキル基を示す。）、および一般式（3）



（式中、R'は水素原子またはメチル基、R⁵炭素原子数3～30のアルキレン基、R⁶は炭素原子数1～20の

アルキル基またはその誘導体、nは1～20の整数を示す。)で表される化合物から選ばれる少なくとも1種の単量体を主成分とするものが挙げられる。

【0040】上記一般式(1)で表されるアクリル酸アルキルエステルの具体例としては、例えばメチルアクリレート、エチルアクリレート、プロピルアクリレート、ブチルアクリレート、ベンチルアクリレート、ヘキシルアクリレート、アクチルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート、ノニルアクリレート、デシルアクリレート、ドデシルアクリレート、シアノエチルアクリレートなどを挙げることができる。

【0041】また、上記一般式(2)で表されるアクリル酸アルコキシアルキルエステルとしては、例えばメトキシエチルアクリレート、エトキシエチルアクリレート、ブトキシエチルアクリレート、エトキシプロピルアクリレートなどを挙げることができる。これらの1種または2種以上を該アクリルゴムの主成分として用いることができる。

【0042】かかるアクリルゴムの構成成分として、必要に応じて上記の一般式(1)～(3)で表される化合物から選ばれる少なくとも1種の単量体と共に重合可能な不飽和単量体を用いることができる。このような不飽和単量体の例としては、スチレン、 α -メチルスチレン、アクリロニトリル、ハログン化スチレン、メタクリロニトリル、アクリルアミド、メタクリルアミド、ビニルナフタレン、N-メチロールアクリルアミド、酢酸ビニル、塩化ビニル、塩化ビニリデン、ベンジルアクリレート、メタクリル酸、イタコン酸、フマル酸、マレイン酸などが挙げられる。

【0043】液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有するアクリルゴムの好ましい構成成分比は、上記の一般式(1)～(3)で表される化合物から選ばれる少なくとも1種の単量体40.0～99.9重量%、不飽和カルボン酸グリシジルエステルおよび/または不飽和グリシジルエーテル0.1～30.0重量%、上記の一般式(1)～(3)で表される化合物から選ばれる少なくとも1種の単量体と共に重合可能な不飽和単量体0.0～30.0重量%である。該アクリルゴムの構成成分比が上記の範囲内であると、組成物の耐熱性や耐衝撃性、成形加工性が良好であり好ましい。

【0044】該アクリルゴムの製法は、特に限定するものではなく、例えば特開昭59-113010号公報、特開昭62-64809号公報、特開平3-160008号公報、またはWO95/04764などに記載されているような周知の重合法を用いることができ、ラジカル開始剤の存在下で乳化重合、懸濁重合、溶液重合またはバルク重合で製造することができる。

【0045】前記液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有するビニル芳香族炭化水素化合物ー共役ジエン化合物ブロック共重合体ゴムとして、好ましくは、

(a) ビニル芳香族炭化水素化合物を主体とするシーケンスと(b) 共役ジエン化合物を主体とするシーケンスからなるブロック共重合体をエポキシ化して得られるゴム、または該ブロック共重合体の水添物をエポキシ化して得られるゴムである。

【0046】ビニル芳香族炭化水素化合物ー共役ジエン化合物ブロック共重合体またはその水添物は、周知の方法で製造することができ、例えば、特公昭40-23798号公報、特開昭59-133203号公報等に記載されている。

【0047】芳香族炭化水素化合物としては、例えば、スチレン、ビニルトルエン、ジビニルベンゼン、 α -メチルスチレン、p-メチルスチレン、ビニルナフタレンなどを挙げることができ、中でもスチレンが好ましい。共役ジエン化合物としては、例えば、ブタジエン、イソブレン、ビレリレン、1,3-ペンタジエン、3-ブチル-1,3-オクタジエンなどを挙げることができ、ブタジエンまたはイソブレンが好ましい。

【0048】共重合体(B)として用いるゴムとして好ましくは、(メタ)アクリル酸エステル-エチレンー(不飽和カルボン酸グリシジルエステルおよび/または不飽和グリシジルエーテル)共重合体ゴムが用いられる。

【0049】共重合体(B)として用いるゴムは、必要に応じて加硫を行い、加硫ゴムとして用いることができる。上記の(メタ)アクリル酸エステル-エチレンー(不飽和カルボン酸グリシジルエステルおよび/または不飽和グリシジルエーテル)共重合体ゴムの加硫は、多官能性有機酸、多官能性アミン化合物、イミダゾール化合物などを用いることで達成されるが、これらに限定されるものではない。

【0050】また、液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有する共重合体(B)の具体例として、エポキシ基を有する熱可塑性樹脂としては(a)エチレン単位が50～99重量%、(b)不飽和カルボン酸グリシジルエステル単位および/または不飽和グリシジルエーテル単位が0.1～30重量%、好ましくは0.5～20重量%、(c)エチレン系不飽和エステル化合物単位が0～50重量%からなるエポキシ基含有エチレン共重合体を挙げることができる。

【0051】エチレン系不飽和エステル化合物(c)としては、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸ブチル、メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸ブチル等のカルボン酸ビニルエステル、 α , β -不飽和カルボン酸アルキルエステル等が挙げられる。特に酢酸ビニル、アクリル酸メチル、アクリル酸エチルが好ましい。

【0052】該エポキシ基含有エチレン共重合体の具体例としては、たとえばエチレン単位とグリシジルメタクリレート単位からなる共重合体、エチレン単位とグリシ

ジルメタクリレート単位およびアクリル酸メチル単位からなる共重合体、エチレン単位とグリシジルメタクリレート単位およびアクリル酸エチル単位からなる共重合体、エチレン単位とグリシジルメタクリレート単位および酢酸ビニル単位からなる共重合体等が挙げられる。

【0053】該エポキシ基含有エチレン共重合体のメルトイントインデックス（以下、MFRといふことがある。JIS K6760、190°C、2、16kg荷重）は、好みしくは0.5～100F～10分、更に好みしくは2～50F～10分である。メルトイントインデックスはこの範囲外であってもよいが、メルトイントインデックスが100F～10分を越えると組成物にした時の機械的性の点で好みしくなく、0.5F～10分未満では成分(A)の液晶ポリエステルとの相溶性が劣り好みしくない。

【0054】また、該エポキシ基含有エチレン共重合体は、曲げ剛性率が10～1300kg/cm²の範囲のものが好みしく、20～1100kg/cm²のものがさらに好みしい。曲げ剛性率がこの範囲外であると組成物の成形加工性や機械的性質が不十分となる場合があり好みしくない。

【0055】該エポキシ基含有エチレン共重合体は、通常不飽和エポキシ化合物とエチレンをラジカル発生剤の存在下、500～4000気圧、100～300°Cで適当な溶媒や連鎖移動剤の存在下または不存在下に共重合させる高圧ラジカル重合法により製造される。また、ポリエチレンに不飽和エポキシ化合物およびラジカル発生剤を混合し、押出機の中で溶融グラフト共重合させる方法によっても作られる。

【0056】本発明で用いる液晶性ポリマーの好みしい具体例として挙げられる液晶ポリエステル樹脂組成物は、(A)液晶ポリエステルを連続相とし(B)液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有する共重合体を分散相とする樹脂組成物である。液晶ポリエステルが連続相でない場合には、液晶ポリエステル樹脂組成物を用いてなるフィルムの、耐熱性、耐薬品性などが著しく低下する場合がある。

【0057】このような官能基を有する共重合体と液晶ポリエステルとの樹脂組成物においては、機構の詳細は不明ではあるが、該組成物の成分(A)と成分(B)との間で反応が生起し、成分(A)が連続相を形成するとともに成分(B)が微細分散し、そのために該組成物の成形性が向上するものと考えられる。

【0058】かかる液晶ポリエステル樹脂組成物の一実施態様は、(A)液晶ポリエステル56.0～99.9重量%、好みしくは65.0～99.9重量%、さらに好みしくは70～98重量%、および(B)液晶ポリエステルと反応性を有する官能基を有する共重合体44.0～0.1重量%、好みしくは35.0～0.1重量%、さらに好みしくは30～2重量%を含有する樹脂組成物である。成分(A)が56.0重量%未満であると

該組成物から得られるフィルムの、耐熱性や耐薬品性などが低下する場合がある。また成分(A)が99.9重量%を超えると該組成物の成形加工性が低下する場合があり、また価格的にも高価なものとなる。

【0059】かかる液晶ポリエステル樹脂組成物を製造する方法としては周知の方法を用いることができる。たとえば、溶液状態で各成分を混合し、溶剤を蒸発させるか、溶剤中に沈殿させる方法が挙げられる。工業的見地からみると溶融状態で各成分を混練する方法が好みしい。溶融混練には一般に使用されている一軸または二軸の押出機、各種のニーダー等の混練装置を用いることができる。特に二軸の高混練機が好みしい。溶融混練に際しては、混練装置のシリンダー設定温度は200～360°Cの範囲が好みしく、さらに好みしくは230～350°Cである。

【0060】混練に際しては、各成分は予めタンブラーもしくはヘンシェルミキサーのような装置で各成分を均一に混合してもよいし、必要な場合には混合を省き、混練装置にそれぞれ別個に定量供給する方法も用いることができる。

【0061】本発明に使用する液晶性ポリマーにおいては、必要に応じて、帯電防止剤、有機充填剤、酸化防止剤、熱安定剤、光安定剤、難燃剤、滑剤、無機または有機系着色剤、防錆剤、架橋剤、発泡剤、蛍光剤、表面平滑剤、表面光沢改良剤、フッ素樹脂などの離型改良剤などの各種の添加剤を製造工程中またはその後の加工工程において添加することができる。

【0062】本発明で用いる液晶性ポリマーからなるフィルムとしては、かかる液晶性ポリマーを、例えば、Tダイから溶融樹脂を押し出し巻き取るTダイ法や、環状ダイスを設置した押し出し機から溶融樹脂を円筒状に押し出し、冷却し巻き取るインフレーション成膜法により得られたフィルムまたはシート、熱プレス法または溶媒キャスト法により得られたフィルムまたはシート、または射出成形法や押し出し法で得られたシートをさらに一軸延伸または二軸延伸して得られたフィルムまたはシートを用いることもできる。射出成形、押出成形などの場合にはあらかじめ混練の工程を経ることなく、成分のペレットを成形時にドライブレンドして溶融成形して、フィルムまたはシートを得ることもできる。

【0063】Tダイ法では、Tダイを通して押し出した溶融樹脂を巻き取り機方向(長手方向)に延伸しながら巻き取って得られる一軸延伸フィルム、または二軸延伸フィルムが好みしく用いられる。

【0064】一軸延伸フィルムの成膜時における押出機の設定条件は組成物の組成に応じて適宜設定できるが、シリンダー設定温度は200～360°Cの範囲が好みしく、230～350°Cの範囲がさらに好みしい。この範囲外であると組成物の熱分解が生じたり、成膜が困難となる場合があり好みしくない。

【0065】Tダイのスリット間隔は、0.2~2.0 mmが好ましく、0.2~1.2 mmがさらに好ましい。一軸延伸フィルムのドラフト比は、1.1~4.0の範囲のものが好ましく、さらに好ましくは1.0~4.0であり、特に好ましくは1.5~3.5である。

【0066】ここでいうドラフト比とは、Tダイスリットの断面積を長手方向に垂直な面のフィルム断面積で除した値をいう。ドラフト比が1.1未満であるとフィルム強度が不十分であり、ドラフト比が4.5を越すとフィルムの表面平滑性が不十分となる場合があり、好ましくない。ドラフト比は押出機の設定条件、巻き取り速度などを制御して設定することができる。

【0067】二軸延伸フィルムは、一軸延伸フィルムの成膜と同様の押出機の設定条件、すなわちシリンダー設定温度が好ましくは200~360℃の範囲、さらに好ましくは230~350℃の範囲、Tダイのスリット間隔が好ましくは0.2~1.2 mmの範囲で該組成物の溶融押出しを行い、Tダイから押出した溶融体シートを長手方向および長手方向と垂直方向(横手方向)に同時に延伸する方法、またはTダイから押出した溶融体シートをまず長手方向に延伸し、ついでこの延伸シートを同一工程内で100~300℃の高温下でテンターにより横手方向に延伸する逐次延伸の方法などにより得られる。

【0068】二軸延伸フィルムを得る際、その延伸比は長手方向に1.2~2.0倍、横手方向に1.2~2.0倍の範囲が好ましい。延伸比が上記の範囲外であると、該組成物フィルムの強度が不十分となったり、または均一な厚みのフィルムを得るのが困難となったりする場合があり好ましくない。

【0069】円筒形のダイから押出した溶融体シートをインフレーション法で成膜して得られる、インフレーションフィルムなども好ましく用いられる。

【0070】すなわち、上記の方法により得られた液晶ポリエステル樹脂組成物は、環状スリットのダイを備えた溶融混練押出機に供給され、シリンダー設定温度が好ましくは200~360℃、さらに好ましくは230~350℃で溶融混練を行って、押出機の環状スリットから筒状フィルムとなって上方または下方へ溶融樹脂が押出される。環状スリット間隔は通常0.1~5 mm、好ましくは0.2~2 mm、環状スリットの直径は通常20~1000 mm、好ましくは25~600 mmである。

【0071】溶融押出しされた溶融樹脂フィルムに長手方向(MD)にドラフトをかけるとともに、この筒状フィルムの内側から空気または不活性ガス、例えば窒素ガスなどを吹き込むことにより長手方向と直角な横手方向(TD)にフィルムを膨張延伸させることができる。

【0072】インフレーション成形(成膜)において、好ましいブロー比は1.5~10、好ましいMD延伸倍率は1.5~4.0である。インフレーション成膜時の設

定条件が上記の範囲外であると厚さが均一でしわの無い高強度の液晶ポリエステル樹脂組成物フィルムを得るのが困難となる場合がある。

【0073】膨張させたフィルムは通常、その円周を空冷または水冷させた後、ニップロールを通過させて引き取る。

【0074】インフレーション成膜に際しては液晶ポリエステル樹脂組成物の組成に応じて、筒状の溶融体フィルムが均一な厚みで表面平滑な状態に膨張するような条件を選択することができる。

【0075】本発明における液晶性ポリマーからなるフィルムの厚みには特に制限はないが、好ましくは3~1000 μm、さらに好ましくは5~2000 μmである。かかる方法により得られる液晶性ポリマーからなるフィルムは、耐熱性、電機絶縁性に優れ、誘電率、誘電正接が低く、軽量で薄肉化が可能であり、機械的強度が良好であり、柔軟性があり、しかも安価なものである。

【0076】本発明において、液晶性ポリマーからなるフィルムの表面にあらかじめ表面処理を施すことができる。このような表面処理法としては、例えばコロナ放電処理、プラズマ処理、火炎処理、スペッタリング処理、溶剤処理、紫外線処理、研磨処理、赤外線処理、オゾン処理などが挙げられる。

【0077】本発明のフィルムコンデンサーは、溶融時に光学的異方性を示す液晶性ポリマーからなるフィルムを誘電体とし、金属箔または金属蒸着膜を電極としてすることを特徴とし、上記の液晶性ポリマーからなるフィルムと、金属箔や金属蒸着膜とを積層してなるものが挙げられる。ここでいう金属箔としては、特に限定するものではないが、例えば、銅箔、アルミニウム箔、錫箔、金箔、銀箔、ステンレス箔、または、ニッケル-クロム、銅-ニッケルなどの合金箔などを挙げることができる。なかでも、銅箔、アルミニウム箔、錫箔、金箔が好ましい。金属蒸着膜としては、特に限定するものではなく、導電性の良好な金属蒸着膜を適宜目的に応じて選択することができる。かかる金属蒸着膜の例としては、銅、アルミニウム、錫、金、銀、ステンレス、または、ニッケル-クロムのような合金の蒸着膜を挙げができる。なかでも、銅、アルミニウム、金の蒸着膜が好ましい。本発明においては、金属蒸着膜と金属箔の積層体を用いてよい。

【0078】本発明のフィルムコンデンサーの形態は、特に限定するものではないが、例えば、金属箔と液晶性ポリマーからなるフィルムとを交互に重ね、リード線が金属箔の長さ方向のほぼ半分で溶接し、はんだ付けまたは圧着などにより接続されたものを巻き回した構造の、タブ形や、液晶性ポリマーからなるフィルムに対して金属箔を該フィルムの幅方向に左右にずらし、液晶性ポリマーからなるフィルムよりはみ出させて巻き回したのち、リード線端を面にはんだ付けなどにより接続した構

造であるエクステンドホイル形、または、液晶性ポリマーからなるフィルムと金属箔とを、巻き回しせずに、一定の寸法に切って積み重ね、メタリコンを施してリード線を付ける積層形などの形態が挙げられる。

【0079】本発明におけるフィルムコンデンサーの構成は、例えば、液晶性ポリマーからなるフィルム／金属箔または金属蒸着膜／液晶性ポリマーからなるフィルム／金属箔または金属蒸着膜／液晶性ポリマーからなるフィルム、液晶性ポリマーからなるフィルム／金属箔または金属蒸着膜／熱可塑性樹脂（但し液晶性ポリマーを除く）からなるフィルム、熱可塑性樹脂（但し液晶性ポリマーを除く）からなるフィルム／液晶性ポリマーからなるフィルム／金属箔または金属蒸着膜／液晶性ポリマーからなるフィルム／熱可塑性樹脂（但し液晶性ポリマーを除く）からなるフィルムなどの組み合わせが挙げられる。なかでも、液晶性ポリマーからなるフィルム／金属箔または金属蒸着膜／液晶性ポリマーからなるフィルム、の構成が好ましい。

【0080】本発明においては、フィルムコンデンサーの各構成成分間に接着剤層を介在させることができる。かかる接着剤としては、ドライラミネーション用接着剤、溶融押し出し用接着剤もしくは樹脂など、目的に応じて用いることができる。

【0081】本発明のフィルムコンデンサーを使用する際の形態は特に限定するものではなく、例えば、リボン状、連続フィルム状、A4版などのカットフィルム状、またはカットフィルムを巻いたロール状のいずれの形態でも使用することができる。

【0082】

【実施例】以下、実施例により本発明を説明する。

10

20

30

(1) 成分(A)の液晶ポリエステル

(i) p-アセキシ安息香酸8, 3 kg (60モル)、テレフタル酸2, 49 kg (15モル)、イソフタル酸0, 83 kg (5モル)および4, 4'-ジアセトキシジフェニル5, 45 kg (20. 2モル)を樹型攪拌翼をもつ重合槽に仕込み、窒素ガス雰囲気下で攪拌しながら昇温し330°Cで1時間重合させた。この間に副生する酢酸ガスを冷却管で液化し回収、除去しながら、強力な攪拌下で重合させた。その後、系を徐々に冷却し、200°Cで得られたポリマーを系外へ取出した。この得られたポリマーを細川ミクロン（株）製のハンマーミルで粉碎し、2, 5 mm以下の粒子とした。これを更にロータリーキルン中で窒素ガス雰囲気下に280°Cで3時間処理することによって、流动温度が324°Cの粒子状の下記の繰り返し構造単位からなる全芳香族ポリエステルを得た。

【0083】ここで、流动温度とは、島津社製高化式フローテスターCFT-500型を用いて、4°C/分の昇温速度で加熱された樹脂を、荷重100 kgf/cm²のもとで、内径1 mm、長さ10 mmのノズルから押し

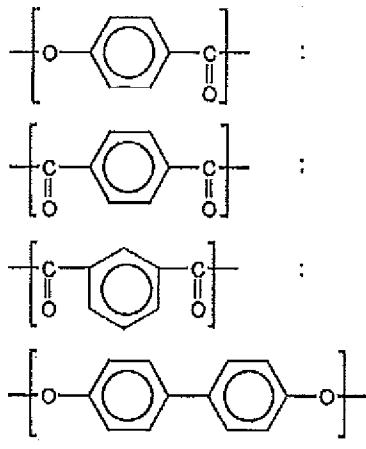
40

50

出すときに、溶融粘度が48000ポイズを示す温度のこという。

【0084】以下該液晶ポリエステルをA-1と略記する。このポリマーは加压下で340°C以上で光学異方性を示した。液晶ポリエステルA-1の繰り返し構造単位は、次の通りである。

【0085】



= 60:15:5:20

【0086】(2) 成分(B)

(i) 特開昭61-127709号公報の実施例5に記載の方法に準じて、アクリル酸メチル／エチレン／グリシジルメタクリレート=59. 0/38. 7/2. 3（重量比）、ムーニー粘度=15、結晶の融解熱量<1 J/gのゴムを得た。以下該ゴムをB-1と略称することがある。ここでムーニー粘度は、JIS K 6300に準じて100°C、ラージローターを用いて測定した値である。また結晶の融解熱量は、DSCを使用し、試料を-150°Cから100°Cまで20°C/分で昇温して求めた。

【0087】(3) 物性測定法

得られたフィルムに関し、以下の要領で測定を行った。

(i) 引張り物性：JIS Z 1727に従い、2号形試験片を用いてMD方向、TD方向の引張り物性を測定した。

(ii) 耐屈曲性：積層フィルムのMD方向、TD方向に積層材料を切り出し、それぞれについて東洋精機（株）製MIT屈曲試験機 Folding Endurance Tester MIT-D型を使用し、JIS-p-8115に基づいて荷重1Kgf、折り曲げ角135度、折り曲げ面曲率半径1 mm、折り曲げ速度175回/m 1nで屈曲試験を行った。

【0088】(iii) 吸水率：ASTM D 570に基づき、23°C、24 hr後でのフィルム中の吸水率を求めた。

(iv) 体積抵抗率：JIS C 2318に基づき、測定温度23°C、湿度50%RH、印加電圧100V×1

minでフィルムの体積抵抗率を求めた。

【0089】(v) 誘電率、誘電正接

周波数1KHz、1MHz: JIS C2318に基づき、測定温度23°C、湿度50%RHで求めた。

周波数1GHz、10GHz:トリプレート線路共振法に基づき、測定温度23°C、湿度50%RHで求めた。

【0090】実施例1

A-1 80重量%、B-1 20重量%を日本製鋼(株)製TEX-30型二軸押出機を用いてシリンダー設定温度350°C、スクリュー回転数200rpmで溶融混練を行って組成物を得た。該組成物の流动開始温度は328°Cであった。また、該組成物は340°C以上で光学的異方性を示した。この組成物のペレットを円筒ダイを備えた60mmΦの単軸押出機に供給して、シリンダー設定温度350°C、回転数60rpmで溶融混練し、直径50mm、リップ間隔1.0mm、ダイ設定温度355°Cの円筒ダイから上方へ溶融樹脂を押し出し、その際この筒状フィルムの中空部へ乾燥空気を圧入して筒*

10

*状フィルムを膨張させ、次に冷却させたのちニップロールに通して引取速度75m/minで引取り、フィルムコンデンサーに用いる、液晶性ポリマーからなるフィルムを得た。

【0091】この際フィルムMD方向の延伸倍率は20.5、ブロー比は4.1、フィルム厚みは11μmであった。以下該フィルムをF-1と略称することがある。

【0092】F-1の引張り強度は、MD 25kg/mm²、TD 9kg/mm²、伸張率は、MD 2%，TD 11%であった。また、F-1のMIT屈曲試験では、10万回屈曲後でも、MD、TDとともにフィルムは破断しなかった。F-1の加熱試験では、200°C、2時間加熱後でもフィルム長はMD、TD共変化せず、耐熱性は非常に優れたものであった。また、F-1の吸水率は0.04%で、極めて吸水率は低く、その体積抵抗率は、4×10¹⁵Ωであり、電気絶縁性も良好であった。

【表1】

周波数	誘電率	誘電正接
1KHz	3.5	0.02
1MHz	3.8	0.04
1GHz	2.9	0.02
10GHz	2.9	0.01

【0093】また、各周波数における誘電率、誘電正接の値は表1に示す通りである。F-1は高周波数においても誘電率、誘電正接の値が非常に低いことがわかる。スリッターを用いて、幅5cmのテープ状としたF-1と、厚さ6.5μm、幅5cmのアルミ箔テープとを積層交互に重ね、リード線が該アルミ箔の長さ方向のほぼ中央でハンダ付けにより接続されたものを巻き回しする方法により、フィルムコンデンサーを得ることができる。

※

※【0094】

【発明の効果】本発明により、耐熱性、高周波特性、電機絶縁性などが優れ、柔軟性があり、吸水率が低く、軽量で薄く、しかも安価な、溶融時に光学的異方性を示す液晶性ポリマーを用いてなるフィルムコンデンサー、特に液晶性ポリマーと、金属箔または金属蒸着膜との積層体を用いてなるフィルムコンデンサーが得られ、産業界で幅広く適用することができる。

フロントページの続き

(51) Int. Cl.¹
C08L 23:08

識別記号

F I
H01G 4/24

コード(参考)
321C
321B

(72) 発明者 古田 元信
茨城県つくば市北原6 住友化学工業株式会社内

★ F ターム(参考) 4J002 BB072 BB102 BG042 BG052
BG072 CD182 CD192 CF161
CF181 GQ00
5E082 BC23 BC35 BC39 EE03 EE07
EE11 EE23 EE37 FF05 FF15
FG06 FG34 FG35 FG36 FG37
PP03 PP06 PP10